

第2世代変性アクリル系（SGA）接着剤を用いた接着体の破壊過程に関する研究

上山 幸嗣

目 次

第1章

序論	1
文献	8

第2章 SGA 接着剤のハニカムサンドイッチパネルへの適用とストライプ状塗布による使用量削減効果

1. 緒言	12
2. 実験	13
3. 結果と考察	18
4. 結言	27
文献	28

第3章 SGA 接着剤のサンドイッチパネルへの塗布方法と評価方法に対する影響差

1. 緒言	30
2. 実験	30
3. 結果と考察	39
4. 結言	47
文献	48

第4章 SGA 接着剤を用いたハニカムサンドイッチパネルの破壊箇所の同定と接着剤の破壊エネルギーの関係

1. 緒言	50
2. 実験	51
3. 結果と考察	58
4. 結言	70
文献	72

第5章 SGA 接着剤におけるモードⅡ破壊エネルギー計測とアコースティックエミッションでの破壊位置の照合

1. 緒言	74
2. 実験	75
3. 結果と考察	81
4. 結言	100
文献	102

第6章 非線形性を考慮したSGA接着剤のエネルギー解放率の算出と接着剤層内部の亀裂
成長のメカニズムの推定

- 1. 緒言・・・・・・・・・・105
- 2. 実験・・・・・・・・・・106
- 3. 結果と考察・・・・・・・・109
- 4. 結言・・・・・・・・・・145
- 文献・・・・・・・・・・146

第7章 総括・・・・・・・・・・147

学会発表・査読論文
謝辞

第 1 章

序論

従来から接着は多くの工業部品に、軽量化、異種材料接合、化学反応を用いた加熱不要化、製造コスト低減、等の様々な利点から多くの製品に用いられている。その用途は航空・宇宙、鉄道、自動車、昇降機、太陽電池、産業用ロボット、精密部品など多岐にわたる。特に、化学反応を利用し液体を固体に変化させ被着体を接合するという言う点で接着剤は優れている。

接着剤の場合、常温反応型のものでは、たとえば摂氏10℃から35℃においても十分反応できるものが殆どである。これは加熱炉などエネルギー消費する工法に比べて大きな利点がある。すなわち、製造コスト、ひいては地球環境のエネルギー消費の削減につながるものであり、製造業においては最優先に解決していく必要のある事項の一つであるといえる^(1~4)。しかし、接着接合は、液体から固体に変化する時間が長く、溶接などの方法に比べると時間を要するため、反応が終了するのを待つための時間や固化するまでの部材保持のための圧縮要の治具の準備など、実施に付随する多くの制約条件が生じる。アクリル系の接着剤はラジカル反応の重合反応を利用して固化する代表的な材料の一つであり、塗布時に使用できる時間と被着体と貼りあわせた後に可搬して良い時間の差異が少ないことが利点で、施工面で接着工法の欠点を小さくすることができる材料である。この点も製造業において非常に大きな利点といえる。反応型のアクリル接着剤が実用用途に用いられている種類は大きく分けて4つに分けられる(Table 1-1)。1つ目は接着剤を酸素と遮断することでラジカル反応を開始する嫌気性接着剤、2つ目は紫外線などで接着剤中のラジカルが発生するように設計された紫外線接着剤が挙げられる。3つ目は水分と反応するシアノアクリレート分子を主組成にした瞬間接着剤である。4つ目は第二世代アクリル(Second Generation Acrylic Adhesive)接着剤(以降SGAと略す)とよばれるタイプのアクリル接着剤である。SGAタイプの接着剤の一般的な組成は主な成分は、アクリルモノマー、柔軟性を付与するニトリルブタジエン(NBR)系のエラストマー、ラジカルを発生させる過酸化化物、過酸化化物と反応するための還元剤、表面の酸素の硬化阻害を防ぐためのワックスなどである。アクリルモノマーはメタクリル酸メチルが代表的な主組成で、OH基を持ったヒドロキシルエチルメタクリレートやヒドロキシルプロピルメタクリレートも代表的な分子である⁽⁵⁾

7)。この組成の過酸化物と反応触媒を A 剤, B 剤に分けて保管し, 使用時に接触することでラジカル反応を開始して重合が始まる。Fig. 1-1 に代表的な SGA 接着剤の組成例を示す。SGA 接着剤はアクリルモノマーとエラストマーが反応していく過程でグラフト重合するといわれている。アクリル系の接着剤の中でも SGA 接着剤は被着体表面に加工油などが残っていたとしても, 接着剤成分と混ざり合うなどして接着強度への影響が少ないなどの特徴的な点がある。製造業において接着前の表面管理の簡素化に繋がる材料は製造コストを抑制しながら信頼性を確保することにつながる。SGA 接着剤は, 工業的有用性に富み, その活用のために研究対象としての価値も有するものである。

Table 1-1 Representative acrylic adhesive

Anaerobic adhesive

UV curable adhesive

Cyanoacrylate adhesive

Second Generation Acrylic adhesive

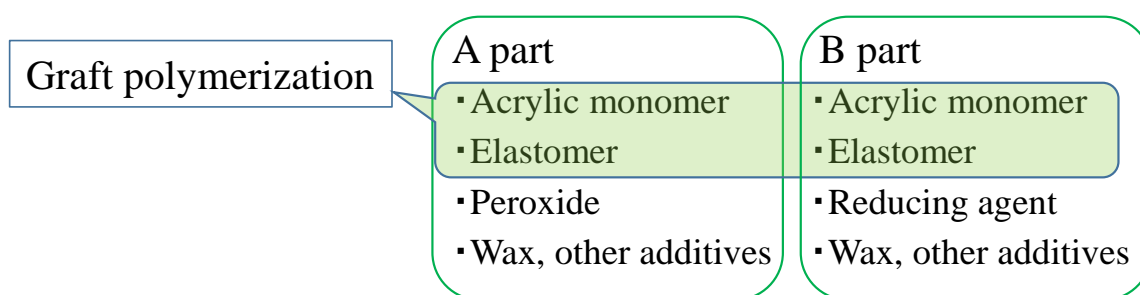


Fig.1-1 A typical example of SGA adhesive composition

本研究では二種類の接着構造体に対しての研究を行う。一種類目はアルミハニカムを用いたハニカムサンドイッチパネルである。ハニカムサンドイッチパネルは, 航空宇宙用, パターションの壁や各種建築構造物, 鉄道車両用, テーブルなどの一般の事務用品など用途は多方面で

ある。ハニカムコアを接着してサンドイッチパネル化する場合、使用される接着剤はエポキシ系、シリコン系、ポリウレタン系が一般的である⁽⁸⁻¹¹⁾。そのような状況の中、近年 SGA タイプのアクリル系接着剤でも粘度調整や反応時間の制御技術が進み広い接着面積への適用が可能な技術水準となってきた⁽⁷⁾。大きな接着面積になるケースが多いハニカムサンドイッチパネルも SGA の適用対象となってきた。適正材の開発が達成されていなかったために、SGA 系の材料を活用したハニカムパネルに関しては適用に関する評価研究は十分な状況ではない。材料の特性と適用の仕方と接着剤の役割や、塗布時の許容欠陥幅などについて調査と情報の整理が必要な状況であり、本研究を通じて明確にしていく。

アルミハニカムを用いたサンドイッチパネルは面同士の接着ではなく、接着剤のフィレットを介しての表面板とハニカムコアの接着である。それゆえ、ハニカムコアの周辺以外に表面板上に接着剤が存在する場合、力の伝達に寄与しない状態になってしまう。本研究は、常温硬化型の SGA タイプのアクリル接着剤を用いて接着剤の無駄をどのように減らしていくかと接着剤の役割について検証することが一つの目の研究目的である。必要以上に接着剤の使用量を削減した場合、接着強度、サンドイッチパネルの強度、剛性の低下に直結してしまうため、所定の強度を確保できる塗布方法、材料の選定、強度評価が必須となる。接着剤の塗布量を減らす取り組みとしては、粘度を適正化する⁽¹²⁾が提案されている。また、アクリル系接着剤ではラジカル反応を利用して、アルミハニカムコアと表面板に成分を塗り分けて接着剤の削減を図ることが提案されている⁽¹³⁾。筆者らは、櫛目ごてを利用してストライプ状に接着剤を塗布する手法を採用する。従来検討されてきた方法とは異なるアプローチで接着剤の削減の検討、ならびに接着剤の役割の本質的な考察を行うこととした。

二種類目の研究対象は構造用途を志向した板金に対する面接着構造である。ハニカムサンドイッチパネルに用いる接着剤は、当然ながら通常の構造用の接着剤として用いることもできる。すでに実績を積んでいる SGA 接着剤とハニカム用 SGA 接着剤の比較を通じ、構造用途への実用性を研究する。

本件で対象にしているタイプの接着剤は DENKA 製のものである。DENKA 製の SGA タイプの接着剤は研究事例も豊富である。瀧口ら⁽¹⁴⁾が板金曲げ塑性加工での接着剤の利用において、衝撃負荷や低温耐性に対する抵抗に関して^(15,16)、単純継ぎ合わせ継ぎ手について⁽¹⁷⁾、リベットと接着の併用に関する研究は原賀⁽¹⁸⁾らが実施している。

本報告では、後半部において材料評価の主題を接着部のエネルギー解放率の計測に置く。その理由として、構造接着の研究事例では結合力モデル^(4,19)らで示されているように、有限要素法の発達に伴い Cohesive Zone Model (CZM)の利用による接着体の応力解析が活発になっているため、これに対応していくことが挙げられる。CZM 法は接着部の破壊エネルギーを包含した考え方である。エネルギー解放率計測に関する研究は従来から行われているが、前述の CZM 法の実用化に伴い、その研究の持つ意味合いがより実用面に対して重要な位置づけになってきている。SGA タイプのアクリル接着剤を用いた CFRP との異種材接着における破壊エネルギー計測に関しては原、Kim らが検討している^(20,21)。衝撃に対する破壊エネルギーの同定については林⁽²²⁾らが定量的ための研究を行っている。近年行われているこれらの多くの研究は CZM 法等の数値モデル活用を志向した研究である。本論文においても、接着部の破壊エネルギーなどを定量化し、せん断や剥離等一般的に実施される接着接合部の評価との関係性を明確にしていく。また、本論文ではエネルギー解放率の定量化に加え破壊過程の抽出に焦点を置く。材料の破壊について本質的な理解を深めるためである。具体的な手法としては、アコースティックエミッションによって、接着剤の破壊状況を検出するアプローチを行う。本研究では、デジタル画像相関法(Digital image correlation)を評価も併せて実施し、より定量的に破壊過程を検証していく。

前述のとおり、破壊過程の同定についてはアコースティックエミッション(Acoustic Emission 略称 AE)を用いた評価を検討する。本研究で主に評価する材料は SGA アクリル系接着剤の中でも破壊時に接着剤の凝集破壊が発生しやすいものである。接着部の破壊がどのように起こっていくのかを AE シグナルの分布・エネルギーと発生状況を反映しながら考察する。SGA タイプのアクリル接着剤は、一般的に硬いアクリル相の成分と柔らかいエラストマー相の成分が高度

にからみ合っており，汎用のゴム変性エポキシ接着剤などより高い延性を示す。SGA 接着剤が強度評価において線形破壊力学の領域での扱いでよいのか，また，塑性変形を多く含み，非線形の塑性変形の領域で評価する必要があるのかを究明していく。この究明により強度測定とエネルギー解放率の関連性がより正確に考察されるものと期待される。アクリル系の接着剤での破壊靱性試験における AE の評価事例は嫌気性接着剤でなされているが⁽²³⁾ SGA タイプの研究事例とは発生挙動が異なると考えられる。本研究では，2 種類の SGA タイプの接着剤を比較していくので，AE の検出感度差についても着目して検証を行っていく。

本論文の構成は，1 章（本章）で研究の概略を述べた後，2 章の序盤で複数の SGA 接着剤を用いてアルミハニカムと表面板におけるフィレットの形成性と，接着剤の粘性について調査を行う。2 章の後半から 3 章，4 章にかけて，一種類の SGA タイプのアクリル接着剤を対象を絞って，接着剤の使用を削減するための検証内容について述べる。接着剤の削減については，前述の通り，櫛目ごてによるストライプ状塗布を接着剤削減のための具体的な手法として採用した。この手法の採用により評価サンプルとして塗布状態と接着未塗布部を制御したものを作りわけて全面均一塗布したものと比較しながら，ハニカムサンドイッチパネルに必要な特性を評価する。2 章では接着剤の評価はクライミングドラム剥離で実施し，3 章ではハニカムサンドイッチパネルの評価で重要な曲げ試験，フラットワイズ試験へ評価手法を拡大する。その評価の中で，接着剤の塗布量，塗布形態や未塗布部の影響について評価を行う。

4 章以降は，接着の破壊状態の情報をより多く得るべく AE を活用した研究を行う。また，接着剤の破壊エネルギーの評価にも着目した評価を進める。4 章ではストライプ状と全面均一塗布のハニカムサンドイッチパネルのサンプルに加え，端部のみを接着して，接着の影響とハニカムコアの座屈の現象とを切り分けた評価を行う。AE の活用では複数のセンサーを利用することで，シグナルの到達時間差より発生位置を特定できる。この特徴を利用して，発生した AE シグナルの位置を特定する。4 章では試験速度依存性に着目した調査も行う。接着剤は粘弾

性を示す物質であり，AEの検出感度も試験速度に依存することが想定されるためである。また，接着剤のエネルギー解放率に関する評価も併せて考察していく。具体的には，テーパー付きのダブルカンチレバービーム（TDCB）の試験片を用いてモードⅠのエネルギー解放率とハニカムサンドイッチパネルの評価結果について関連付けを行う。

5章，6章においてはハニカム用途以外に通常の汎用の構造用接着剤への展開を検討するためにメタクリル酸メチル（MMA）系のモノマーで構成されるSGA接着剤(C355SL)と4章までに主に評価してきた非MMA系のモノマーを主成分とするSGA接着剤（NS770）を比較する。5章ではモードⅠの試験として4章に続いてTDCBでの評価を行い，破壊時のAEの積算エネルギーの比較評価を行う。また，シングルラップの引っ張りせん断試験に加えてモードⅡ破壊靱性試験として3点曲げでのEnd Notched Flexure (ENF) 試験を実施する。モードⅠでは接着部の亀裂を検出しやすいが，延性のある接着剤ではモードⅡの試験では接着剤の亀裂の検出が困難を伴うため，デジタル画像相関法との併用評価を推進して亀裂の検出やひずみの分布，臨界ひずみ決定ための補助とした。また，接着剤の破壊のメカニズム考察のために，染色技術を活用し透過電子顕微鏡（TEM）にて，接着剤のナノレベルでのエラストマー相とアクリル相の分布状況の確認も行い破壊過程の考察に用いる。

6章では，モードⅡの試験では線形破壊力学に基づいた接着部のエネルギー解放率の算出について，算出方法の見直しを行う。具体的には破壊のプロセスゾーンを考慮してエネルギー解放率の計測値の高精度化を検討する。また，ENF試験の臨界荷重の近傍で荷重を止めたサンプルを作製し，そのサンプルに対してカラーチェック剤を浸透させることや，断面を研磨して観察することで，接着層における亀裂の発生状況について検証を行う。この章ではENF試験における亀裂の発生状況確認だけでなくTDCBとせん断試験の破断面の観察も実施し，AEの発生現象について破壊状態との関連性について議論する。6章の中盤以降ではSGA接着剤に加えてエポキシ接着剤を含めたダンベル試験片としての樹脂バルク体としての物性調査を行い破壊靱性試験の考察や材料種間の差異の考察も行う。研究の最終部では本研究の各種実験で得られた

結果をどのように数理モデルへ展開していくことが望ましいかの提案を行う。

文献

1. 原賀康介 “高信頼性を引き出す接着設計技術” 日刊工業新聞社 (2013)
2. 柳原栄一 “ここまで来た接着技術” 工業調査会 (2003)
3. 竹本喜一, 三刀基郷 “接着の化学” 講談社 (1997)
4. R.D.Adams, 佐藤千明編 ”接着工学“ エヌティーエス (2008)
5. 堀江康信, 佐藤千明, 他 “現場で役立つ最新の接着・粘着 技術Q & A” 産業技術サービスセンター 156-157 (2013)
6. Wakabayashi K., *Journal of the Japan welding society* **57**, 436 (2010)
7. Suto.Y, Yoda K., Watanabe J. & Yang L. *The journal of adhesion society of Japan* **48**, 127 (2011).
8. Noguchi. H., "Application & Function of Honeycomb Structure", CMC Publishing Co.,Ltd. 42 (2008)
9. SIKA service AG Sandwich Panel Brochure “SANDWICH PANEL BONDING BUILDING FOR THE FUTURE” (2014)
10. Ueno S. *et al.*, Japan Patent Kokai Hei 11-286063 (1999)
11. Yamamoto T. *et al.*, Japan Patent Kokai 2002-219759 (1999)
12. Fukasawa Y., Japan Patent Kokai Hei 2-78536 (1990)
13. A.Hatayama. *et al.*, Japan Patent Kokai 2001-89718 (2001)
14. Takiguchi M., Izumi J., Yoshida S., *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series A* **68**, 126 (2002)
15. Taguchi K., Nemoto H., Kihara K., Isono H., Sugibayashi Y., *Journal of Japan Institute of Light Metals* **57**, 6 (2007)
16. Kihara K., Ishii K., Takahashi T., Isono H., Sugibayashi T., *Journal of the adhesion society of Japan* **49**, 11 (2011)
17. Kihara K., Yoshida S., Ueno M., Sugibayashi T., *Journal of the adhesion society of Japan* **50**, 107 (2014)

18. Haraga K., Taguchi K., Yoda K., Nakashima Y., *International Journal of Adhesion & Adhesives* **23**, 371 (2003)
19. Yoshimura.A; *Journal of the adhesion society of Japan* **50**, 179 (2014)
20. Hara K., Imanaka M., Kouno Y., Ikeda T., *JCCM8* proceeding 3D-10 (2017)
21. Kim H., Naito K., Oguma H., *International Journal of Adhesion & Adhesives* **82**, 173 (2018)
22. Hayashi A., Sekiguchi Y., Sato C., *WCARP6* extended abstract (2018)
23. Droubi M, Stuart A., Mowat J., Noble C., Prathuru A, Faisal N. *The Journal of Adhesion* **94**, 347 (2017)

第2章

SGA 接着剤のハニカムサンドイッチパネルへの適用
とストライプ状塗布による使用量削減効果

1.緒言

ハニカムサンドイッチパネルは、軽量でかつ剛性が高いことから航空機をはじめ、宇宙用機器、鉄道車両、建築材など様々な用途で用いられてきたが、機器の軽量化による省エネが求められている昨今、ハニカムパネルのコストダウンにより、新たな汎用機器用途への適用拡大が期待されている。ハニカムサンドイッチパネルは、ハニカム、表裏の表面板、接着剤、フレーム材が主要な構成部材であるが、接着剤自体の価格や加熱硬化に伴う接着加工費用がパネル価格の大きな割合を占めており、接着剤の塗布量削減と加熱レス化が重要な課題である。

接着剤塗布量を削減するためにはハニカムサンドイッチパネルの接着形態に沿った対策を実施する必要がある。ハニカムサンドイッチパネルの接着箇所は、接着剤のフィレット部以外は接着強度にほとんど寄与しないため、接着剤の有効利用が難しい構造である⁽¹⁾。そのため、できるだけフィレット部に接着剤を集中させて強度に寄与しない接着剤を減らすことが重要な要素技術となる。サンドイッチパネルの接着では、表面板に対する接着剤の塗布方法としてスプレー、ローラー、刷毛、こてなどによる全面塗布が一般的な手法であるが、我々は接着強度に寄与しない接着剤を減らすために、全面塗布ではなく櫛目ごてによってストライプ状に塗布する手法に着目した⁽²⁾。一方、加熱レス化による接着加工費用の低減に対しては、主剤と硬化剤の混合から貼り合わせまでの可使時間がサンドイッチパネルの作製に対して十分に確保でき、かつ貼り合わせ後の室温の初期固着時間が短い2液変性アクリル系接着剤を用いることにより対策できると考えた。

本章では、まずハニカムコアの接着に適したアクリル接着剤の選定作業を行う。絞り込みを行った後に接着剤の削減効果を検証する。接着剤を選定したのち、櫛目ごてでのストライプ状塗布による接着剤の塗布量削減を目的として、ストライプ状の接着剤の高さとストライプのピッチを変化させた時のクライミングドラム剥離トルクの変化を、次の6つの観点から検討した。①ストライプ状に塗布したときの塗布量と塗布形状、②塗布量と剥離トルクの関係、③全面均一塗布とストライプ状塗布の差、④ストライプ状の接着剤の向きを水平方向と垂直方向に

変化させたときの剥離トルクへの影響，⑤接着剤のフィレット形成時の形状，⑥接着剤が載っていない領域の比率。

2. 実験

2.1 ハニカムサンドイッチパネル成形用のアクリル接着剤の選定

ハニカム接着用に使うアクリル系接着剤について詳細な強度等の調査を実施する前に，DENKA 製 NS770，DENKA 製 C355SL20，セメダイン製 Y611 黒 S，LORD 製 410 の 4 種類の予備検討を実施した。いずれの接着剤も数分以上の施工可能時間を有し，所定の接着面積以上になることが多いサンドイッチパネル構造物の施工に使用することが可能である。粘度の低いものとしてセメダイン製 Y611 黒 S を，中程度の粘度のものとして DENKA 製 NS770，C355SL を，高粘度品として LORD 製 410 を選定して評価に供した。いずれの接着剤もハニカムパネル以外の通常の汎用の金属接着に使用することができる接着剤である。

2.2 ハニカムサンドイッチパネルにおけるフィレット成形性の確認

以下の方法で，選定した接着剤のフィレット成形性の評価を行った。試験片とハニカムコアの形状と寸法を Fig.2-1 に示した。表面板の材質はアルミニウム A5052-H34 で，板厚さを 1.0mm とした。ハニカムの材質はアルミニウム A3003-H19 で，箔厚さ 0.06mm，セルサイズ一辺 6mm，高さ 8mm のものを用いた。ドクターブレードを用いて接着剤を均一に表面板上に平らな作業台の上で広げた。この時，塗布後の接着剤層の厚さは 0.35mm に設定した。接着剤がハニカムに沿って上に這い上がるように，接着時に下側に置いて，その上にハニカムと当板を乗せた。接着作業は次のように行った。

(1)作業環境は $22\pm 2^{\circ}\text{C}$ で行った。

(2)表面板および当板をアセトン脱脂後，接着剤を測定板および当板に塗布した。接着剤の混合は，手混合で行った。

- (3)測定板には，ドクターブレード法で接着剤を広げた。
- (4) 接着層厚さ 0.4mm の接着剤をドクターブレードで全体に均一塗布した。
- (5)このように準備した表面板を用いて，ハニカムコアを挟んで重石を載せて定盤上で静置し，平均荷重 22 g /cm² を印加して保持した。
- (6)室温で 24 時間以上養生した。
- その後，サンドイッチパネルの形成状態を確認した。

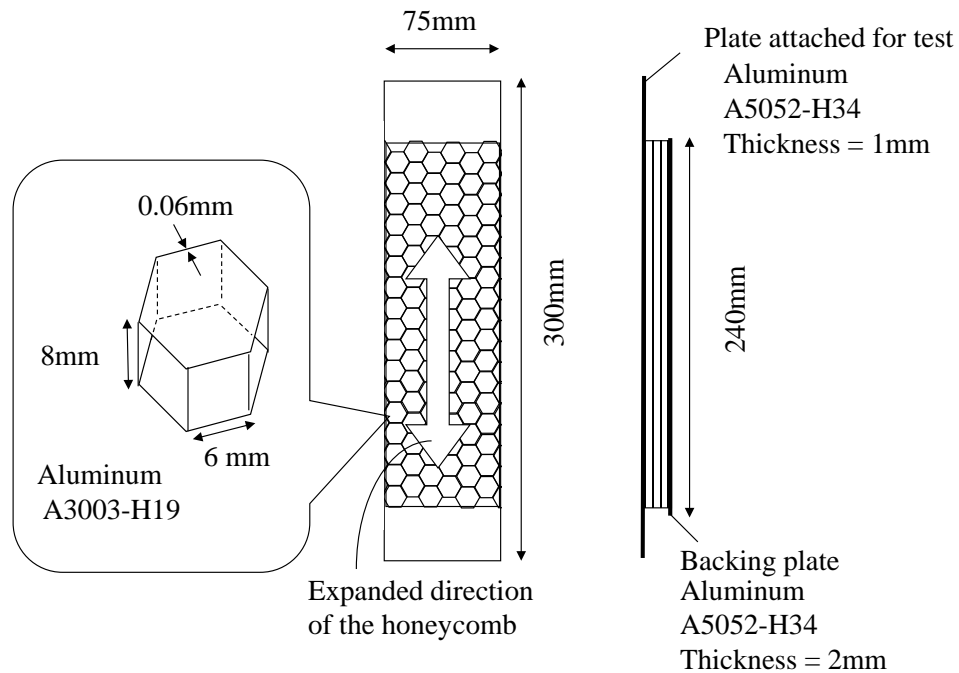


Fig.2-1 Shape and dimensions of honeycomb and specimens

サンドイッチパネルの成形状態の結果は以下である。

DENKA 製の NS770M25 は流動を生じて下側，上側とも両方ともフィレットを形成して硬化した。サンドイッチパネル化可能である。DENKA 製 C355SL20 は流動を生じてフィレットを形成するがサンドイッチパネルにした場合硬化しない部分が多く発生した。セメダイン製 Y611S は下側に接着剤を敷いた場合はフィレット形成が可能だが，上側に接着剤を敷いた場合，液体が垂れてフィレットを形成できない。また，接着剤の硬化に 3 時間以上を要した。LORD 製の 410 は硬化し，サンドイッチパネル化自体は可能であるが，目視で確

認では接着剤の流動は殆ど無く、ハニカムに対して殆どフィレットを形成しない。

C355SLに関しては、サンドイッチパネルの内部の接着剤の大部分は硬化しない状態であった。これは、DENKA製のSGA接着剤では、酸素障害の影響で硬化のための重合が阻害されないように、パラフィンのワックスが酸素遮断の役割を果たす。しかし、ハニカムのような密閉空間ではC355SLのように主成分が易揮発性であるメタクリル酸メチルのようなモノマーの場合、半密閉空間に充満し、酸素障害の影響を回避するパラフィンのワックスの表面析出による酸素遮断が機能しないものと推定される。セメダイン Y611 黒 S についても、硬化するために3時間以上の時間を要した。この現象も、Y611 黒 S の接着剤の本来の製品仕様としては、板金構造物を貼り合わせる場合、常温 30 分程度で硬化するものであるが、30 分を大幅に超える非常に長い時間を要しておりアクリル樹脂硬化の酸素障害の影響であるものと推定された。LORD 製 410 もフィレットを形成しない点でハニカムパネル用途に適しているとは言えない。適用性の検討結果を Table2-1 にまとめた。

Table 2-1 Results of confirmation of applicability to honeycomb sandwich panel

Adhesive material	Judgement
NS770M25	Usable
C355SL20	Poor
Y611S	Poor
410	Poor

2.3 粘度の評価

接着剤の塗布状態とハニカムのフィレット形成については接着剤自体の流動性と関係が深いため、これらの接着剤の粘度を計測して現象を考察する。本研究ではレオメーターによるコーンプレートを用いた粘度の測定を実施する。粘度の測定には UBM 株式会社製の粘弾性測定解析装置(MR-500)を用いた。

測定条件は定常流粘性率、剪断速度依存性モードで行った。コーンプレート(コーン直

径:19.96mm, 角度:4.948°) ギャップ高さ(床とコーン先端の隙間): 54 μ m である。これらの接着剤について、接着剤の混合後の粘度を測定した。測定温度は常温 23 \pm 2°C で実施した、周波数は 0.00973rpm から 30rpm まで段階的に変化させて測定した。下記に、0.02rpm, 0.2rpm, 2rpm, 20rpm に相当する部分を記す。

Table 2-2 Rotational speed dependence on adhesive viscosity

Adhesive	Rotation speed			
	0.02rpm	0.2rpm	2rpm	20rpm
NS770M25	212 Pa·s	94.5 Pa·s	38700 mPa·s	22500 mPa·s
C355SL20	1340 Pa·s	195 Pa·s	46600 mPa·s	15200 mPa·s
Y611S	Undetectable	11 Pa·s	6240 mPa·s	4480 mPa·s
410	9190Pa·s	1570Pa·s	281000m Pa·s	23200 mPa·s

Y611S は 0.2rpm 時でも粘度が 11Pa·s と低く、上面に設置した場合垂れが多い 410 は 0.2rpm 時で 1000Pa·s を超える粘度であり、自重や表面張力程度では殆ど流動しない。C355SL20 や 0.2rpm 時に 195Pa·s, NS770M25 は 94.5Pa·s と、ハニカムと接触後もわずかな流動を示す。これらの所期検討は、このような材料の流動特性を反映している。

2.4 ストライプ状塗布

アクリル接着剤をハニカムパネルの構成部材として用いる時、どのような形態でハニカムと接着するのかを確認する。本研究では、接着剤を表面板に塗り、その状態でハニカムとサンドイッチ状態にする。工業的に均一に接着剤を塗布するには様々な手法が挙げられる。例えば、スプレーや、ローラー、こて、刷毛などによる全面均一塗布が挙げられる。本研究では、接着剤の塗布量を減らすために、櫛目こてによる塗布に着目した（コニシ）。接着剤流動する特徴を活かすことで、接着剤をより効率的にハニカムに接触することが期待できるからである。

本研究では、ハニカムヘフィレットを形成しながら塗布量を削減することを志向してい

る。これらの初期検討結果から、制御しやすさの点からハニカム評価用の接着剤は、NS770M25 を主体に実施していく。具体的には、くし目ゴテの溝、インターバルを変動させ、表面板への接着剤の塗布の量と塗布形状を変化させる。また、比較対象のために全面均一塗布をおこなう場合の資料も準備し、接着剤の削減によりどのような特性がどのように変化するかを検証する。

次の2種類の塗布方法を実施する。

(1) 櫛目ごて(Comb type trowel)によるストライプ状塗布

Fig.2-2 に、ストライプ状塗布に用いた櫛目ごての形状と寸法を示した。櫛目ごての溝の形状は底辺が 2mm の三角形であり、溝形状の三角形の高さを溝深さ H とし、これを 0.86mm から 2.0mm までの4条件変化させた。溝のピッチ P は 5mm から 15mm までの4条件変化させた。櫛目ごてはおよそ 50mm/秒の速度で移動させた。角度は殆ど垂直に立てている。角度としては 90~95 度程度である。

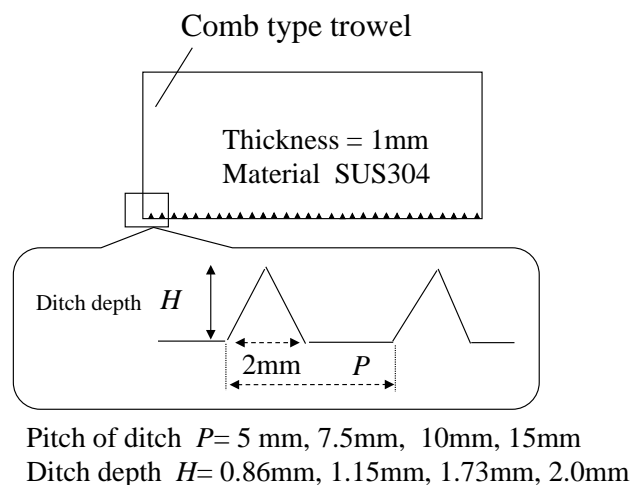


Fig.2-2 Shape and dimensions of comb type trowel

櫛目ごてにより形成されるストライプの方向は、試験片の長さ方向を標準とし、比較と

して試験片の幅方向も評価した。

(2) 全面均一塗布

ドクターブレードを用いて接着剤を均一に広げた。塗布後の接着剤層の厚さは 0.17mm から 0.35mm までの 4 条件変化させた。

2.5 接着強度測定のためのサンドイッチパネルの作製方法

クライミングドラム剥離強度を測定する測定板は、接着剤がハニカムに沿って上に這い上がるように、接着時に下側に置いて、その上にハニカムと当板を乗せた。接着作業は次のように行った。

(1)作業環境は $22\pm 2^{\circ}\text{C}$ で行った。

(2)表面板および当板をアセトン脱脂後、接着剤を測定板および当板に塗布した。接着剤の混合は、内径 4mm の 12 コマスタティックミキサーで行った。

(3)測定板には、櫛目ごとおよびドクターブレードで接着剤を広げた。

(4) 当板には、測定板側以上の塗布量となる $360\text{g}/\text{m}^2$ (接着層厚さ 0.4mm) の接着剤をドクターブレードで全体に均一塗布した。

(5)測定板が下側に、当板が上側になるようにハニカムコアを挟んで重石を載せて定盤上で静置し、平均荷重 $22\text{ g}/\text{cm}^2$ を印加して保持した。

(6)室温で 24 時間以上養生後、硬化ばらつきを減らすために 60°C 、2 時間の追加の加熱を行った。

3. 結果と考察

3.1 ストライプ状塗布における接着剤塗布量とビード寸法

Table 2-3 に、接着剤をストライプ状塗布した場合の塗布重量(W_{dis})と櫛目寸法からの理

論塗布量に対する実際の塗布量の割合 $R(e/t)$ を示す。(e は experimental, t は theoretical を意図する。)また、ストライプ状塗布での塗布量を全面均一塗布に換算した場合の接着剤層厚さ(h_{con})も示す。

Table 2-3 Amount of dispensing adhesive (W_{dis}), The thickness calculated in the case of dispensing flatly (h_{con}), The ratio of the experimental amount to the theoretical dispensing ($R(e/t)$)

		$H = 0.86\text{mm}$			$H = 1.15\text{mm}$			$H = 1.73\text{mm}$			$H = 2.0\text{mm}$		
		W_{dis} (g/m^2)	h_{con} (mm)	$R(e/t)$ (%)	W_{dis} (g/m^2)	h_{con} (mm)	$R(e/t)$ (%)	W_{dis} (g/m^2)	h_{con} (mm)	$R(e/t)$ (%)	W_{dis} (g/m^2)	h_{con} (mm)	$R(e/t)$ (%)
Pitch of Ditch P (mm)	5	110.7	0.111	64.4	134.8	0.135	58.6	172.6	0.173	49.9	199.6	0.200	49.9
	7.5	76.7	0.077	66.9	94.3	0.094	61.5	118.5	0.119	51.4	130.0	0.130	48.8
	10	57.6	0.058	67.0	69.3	0.069	60.2	102.8	0.103	59.4	111.5	0.111	55.7
	15	38.9	0.039	67.8	54.8	0.055	71.5	64.8	0.065	56.2	71.1	0.071	53.3

この結果より、ストライプ状塗布で塗布される接着剤重量は、理論量の 50～70%程度であり、溝深さ H が小さいほど、溝ピッチ P が広いほど割合が高くなることがわかる。櫛目ごての種類によって $R(e/t)$ に差が生じる理由は、溝の開口面積が変わると接着剤が溝から押し出される圧力の差が発生するためと考えられる。櫛目ごてを移動させる速度はほぼ一定であるので、開口面積が小さいと接着剤が櫛目ごての開口部に入出入りする際に接着剤が高い圧力を持つ状態になっていると推定される。

今回評価した接着剤は接着剤のメーカ仕様（B 型粘度計での 2rpm/20rpm）でのチクソ指数が 1.8～1.9 を有する材料であり、前述のコーンプレートでのレオメーターで測定したチクソ指数は 1.72 である。高い圧力が生じたときに流れやすい傾向を示すことも影響すると考えられる。

Table 2-4 には、接着剤をストライプ状塗布した場合の硬化後のストライプ部の最大高さ と幅と溝高さに対する割合を示した。塗布後に形成されたストライプ状の接着剤の形に注目すると、その最大高さは櫛目ごての 40～65%程度である。一方、ストライプ部の幅の広がり は 130～191%と溝の寸法より大きく広がっている。溝の高さ H が高いと、ストライプ状の樹脂量が増えるので、液体の自重の影響が大きくなり、そのため広がった接着剤の

幅が広がる。幅が広がるため、結果としてストライプ状の接着剤の高さが低くなる。

Table 2-4 Dimensions of adhesive bead before contacting honeycomb

		Height of adhesive bead and ratio for ditch depth H		Width of adhesive bead and ratio for ditch width (2mm)	
mm		mm	%	mm	%
Ditch depth H	0.86	0.56	65	2.60	130
	1.15	0.61	53	3.08	154
	1.73	0.74	43	3.14	157
	2.00	0.80	40	3.82	191

3.2 接着強度試験

接着強度は、Fig.2-3 に示すクライミングドラム剥離試験方法 (ASTM D1781) に準じて、クロスヘッド速度 25mm/min、測定温度 23℃で測定した。測定サンプル数は $n=3$ とした。平均剥離荷重 P_0 から、(2-1) 式より平均剥離トルク M を算出した。

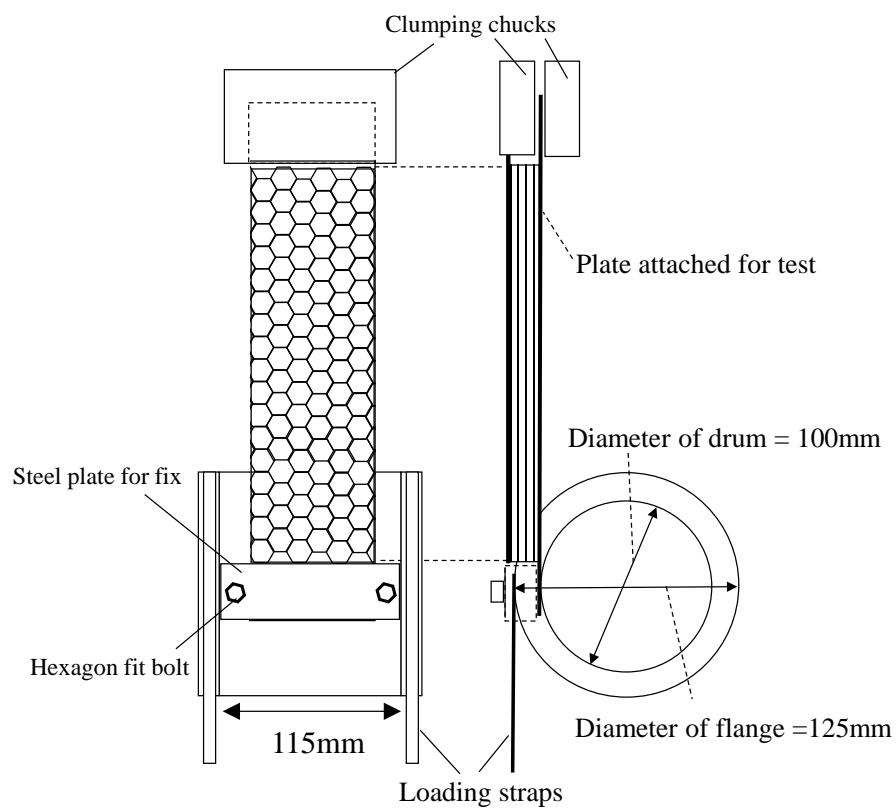


Fig.2-3 The climbing drum peeling test

$$M = \frac{(P_b - P_0) \times (D - d)}{2b} \quad (2-1)$$

M : 平均剥離トルク(N・mm/mm)

P_b : 平均剥離荷重(N)

P_0 : 抵抗荷重(N)

(1.0mm厚さのアルミ板のみの巻き取り荷重 : 実測値 255.8N)

D : ベルトの巻上げ直径(125mm)

d : 測定板の巻取り直径(100mm)

b : 測定板の幅 (75mm)

3.3 櫛目ごての寸法, 接着剤塗布量と剥離トルクの関係

Fig.2-4 に, 櫛目ごての溝深さ H , 溝ピッチ P と剥離トルク M の関係を示す。溝ピッチ P と剥離トルク M の関係を示す。溝深さ H が深いほど, 溝ピッチ P が小さいほど剥離トルクは増加している。Fig.5 には, 接着剤塗布量と剥離トルク M の関係を示す。剥離トルクは, 概ね塗布量の増加に比例して増加しているが, 同じ塗布量で比較すると, 櫛目ごての溝深さ H が深いほど, 剥離トルクが高くなる傾向にあることがわかる。

Fig. 2-5 には, 全面均一塗布の場合の塗布量と剥離トルクの関係も併せて示す。この結果より, 櫛目ごてによるストライプ状塗布では, 全面均一塗布の場合より, 少ない塗布量で高い剥離トルクが得られており, ストライプ状塗布では, 全面均一塗布に比べて, 約 40%程度少ない塗布量で同一の剥離トルクが得られることがわかる。

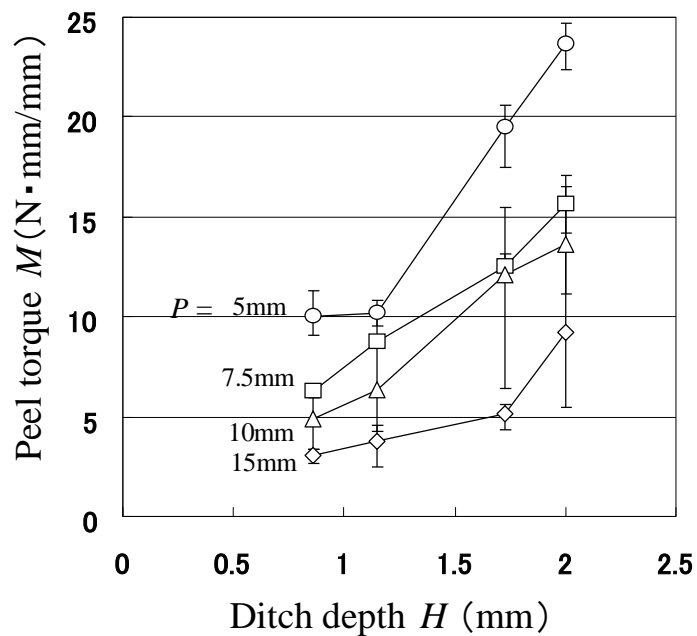


Fig.2-4 Relationship between ditch depth H , ditch pitch P and the peel torque M

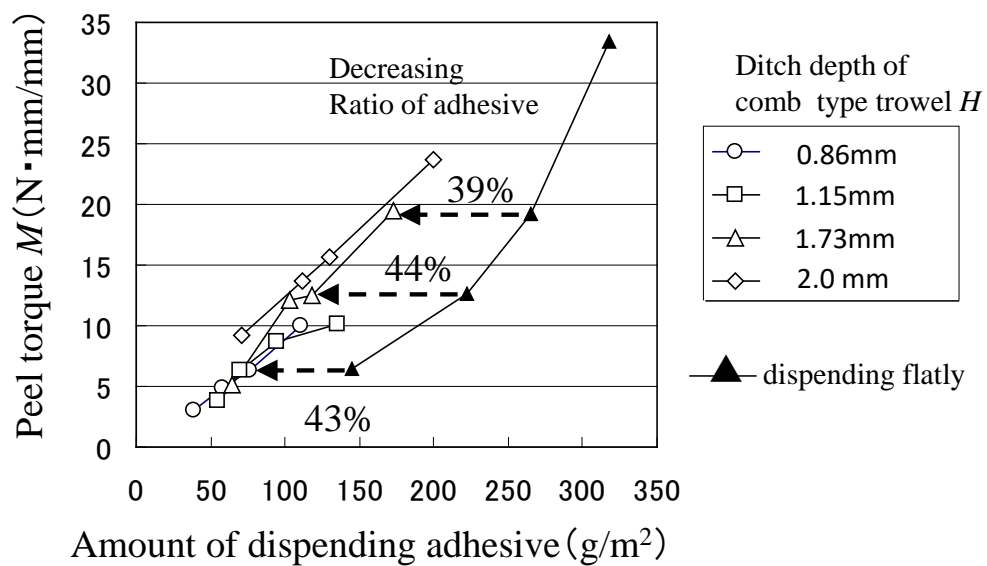


Fig.2-5 Relationship between the amount of dispensing adhesive and the peel torque

3.4 櫛目ごて塗布でのストライプの方向の影響

Fig.2-6 に, 櫛目ごて塗布でのストライプの方向を測定板の長手方向に対して平行と直角にした

場合の、接着剤塗布量と剥離トルクの関係の比較を示す。櫛目ごての溝ピッチ P は 5mm で比較した。その結果、平行と直角方向での剥離トルクはほぼ同等であり、剥離トルクへの塗布方向の異方性の影響は小さいといえる。

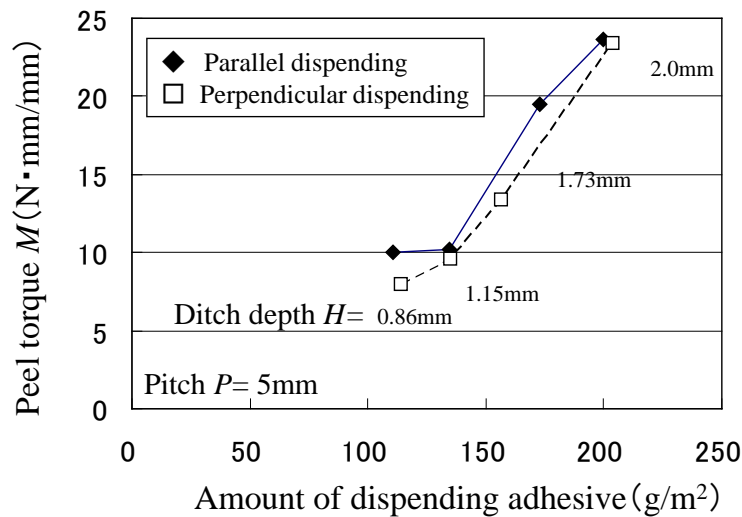


Fig. 2-6 Relationship of peel torque and dispensing direction

3.5 接着剤のフィレット形成状態

Fig.2-7 に、ストライプ状塗布した試験片の剥離試験後の表面板側の状態を示す。ハニカムと接着剤が多く接触している部分（A 部）と接触が少ない部分（B 部）があることがわかる。接着部の破壊モードは接着剤の凝集破壊が支配的である。B 部においては、接着剤はハニカムの辺方向に広がって、ストライプの幅より広がっていることがわかる。これは、接着剤とアルミハニカムの接触により、ハニカムのアルミニウムの表面張力によって接着剤が広がったものと考えられる。Fig.2-8 に、ストライプの幅 W_b とハニカムの辺方向への接着剤の広がり幅 W_f を示す。溝深さ H が深くて塗布量が多いほど接着剤の広がり大きくなり、塗布量 199g/m² の場合は 5.3mm(ハニカム辺長さ 6mm の 88%)まで広がっている。

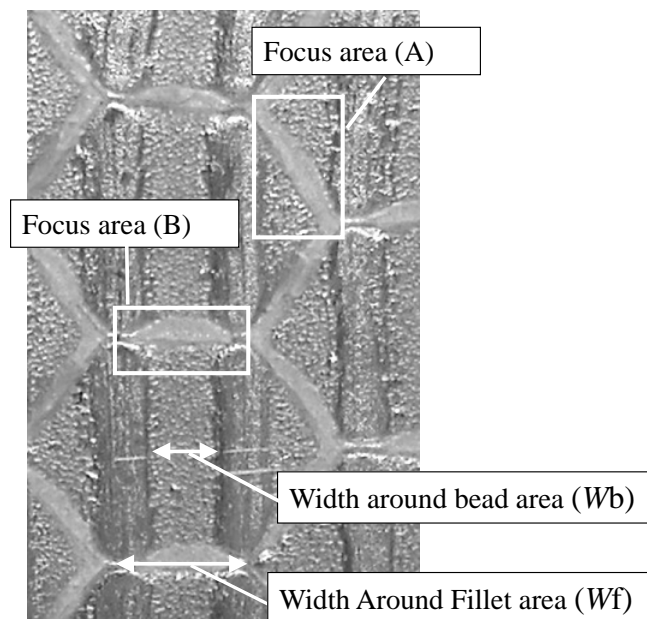


Fig.2-7 Surface states of the aluminum plate after peeling test
(dispensing with comb type trowel)

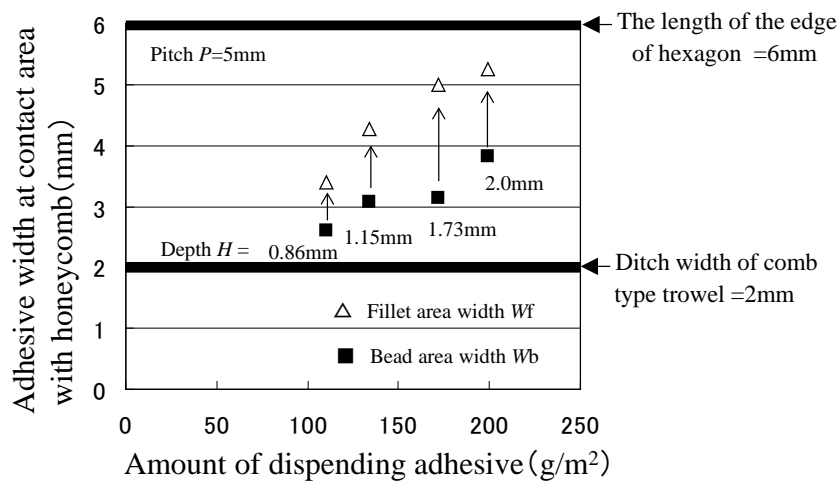


Fig.2-8 Width variation of adhesive line

アルミハニカムの表面張力によって接着剤が辺方向に広がるのであれば、同様に高さ方向にも広がると考えられる。そこで、Fig.2-9に、ストライプ状塗布において形成されるストライプの高さとハニカム接触部の接着剤の高さを示す。Fig.2-9には、全面均一塗布の場合

合も同様に示す。この結果より、ストライプ状塗布、全面均一塗布のいずれの場合も、接着剤がアルミハニカムに這い上がっているが、ストライプ状塗布における這い上がりの割合は1.0～1.1倍で、全面均一塗布の2.3～2.8倍に比べてかなり小さいことがわかる。これは、全面均一塗布の場合はハニカムの辺方向へは広がらないため高さ方向のみに這い上がるが、ストライプ状塗布の場合は、Fig.2-7のB部に示したように、ハニカムの辺方向にも広がるためと考えられる。ストライプ状塗布の最大高さと全面均一塗布におけるハニカム部の這い上がり後の接着剤高さを比べると、いずれの塗布量においても、ストライプ状塗布の方が高いことがわかる。Fig.2-5において、塗布量が同じであればストライプ状塗布の方が全面均一塗布に比べて高い剥離トルクが得られる一因としてハニカム部の接着剤高さが考えられる。

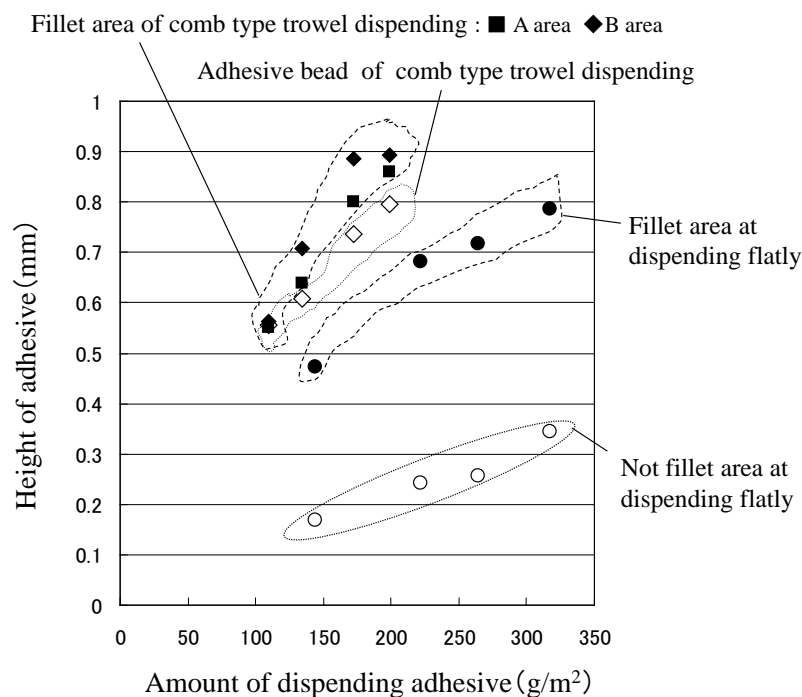


Fig.2-9 Height of adhesive bead and fillet on the honeycomb surface

3.6 接着剤が載っていない領域

接着剤の塗布量を低減するためには、フィレット形成に寄与しない部分には接着剤が塗布されていないことが理想的である。

Fig.2-10 に、ストライプ状塗布において接着剤が殆ど存在しない領域を示す。この面積を W_n としたとき、接着剤塗布量とハニカムの六角形の面積に対する W_n の比率を Fig.2-11 に示す。Fig.2-11 には、塗布量と剥離トルク M の関係も示した。楯目ごての溝ピッチが一定の場合、溝深さ H が浅いほど W_n の比率は高くなるが、剥離トルク M は W_n の比率が高いほど低くなる。ハニカムに接触しない部分での接着剤の広がりには接着剤の自重の影響が大きいと考えられる。

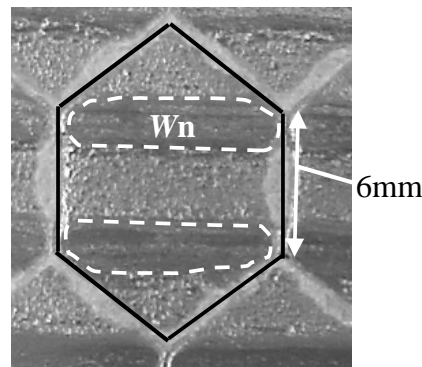


Fig.2-10 Ratio of the not dispensing adhesive area

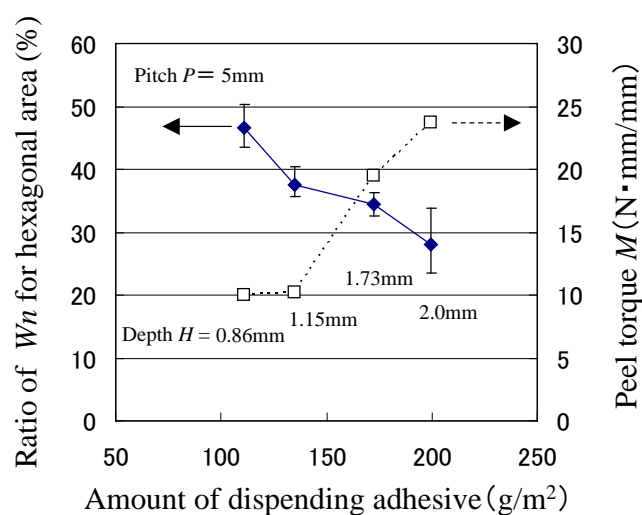


Fig.2-11 Ratio of the not dispensing adhesive area

3.6 ハニカムへのフィレットの這い上がる時間

ハニカムと接着層が接触してから、一定の高さになるまでの時間を調査した。表面板に NS770M25 を一定の接着厚み約 0.3mm になるように均一に塗布し、ハニカムを接触させた。側面側からデジタルカメラで撮影し、その画像から、ハニカムの這い上がりの時間変化を確認した。この測定は 23℃ の雰囲気で行った。その結果を Fig.2-12 に示す。ハニカムと接着剤の接触後およそ 5 秒後には 0.6mm 以上の高さになり、その後 120 秒まではゆっくり増加してほぼ一定の値となった。

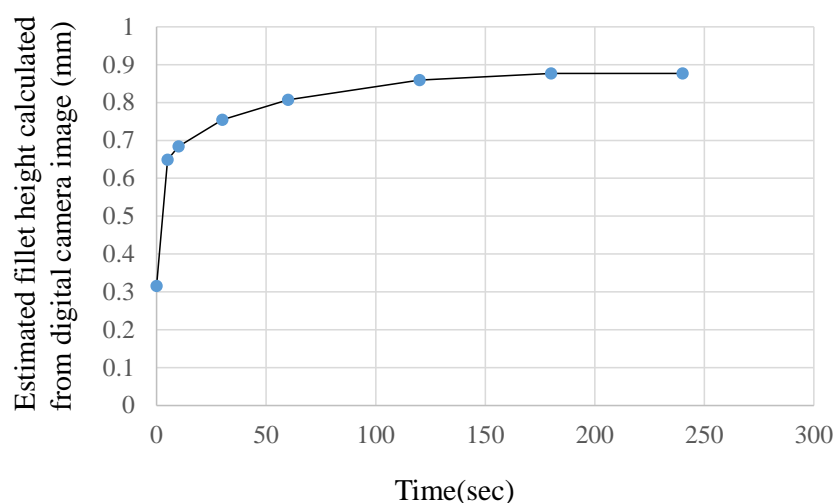


Fig. 2-12 Time for the adhesive fillet to crawl up to the honeycomb core

4. 結言

ハニカム接着用に使うアクリル系接着剤について詳細な検討を実施する前に予備検討として、DENKA NS770, DENKA C355SL20, セメダイン Y611 黒 S, LORD410 の 4 種類を調査した。いずれの接着剤も数分以上の施工可能時間を有しており、一定の大きさになることが多いサンドイッチパネル構造物の施工に使用することが可能である。

5000mPa・s の水準の粘度では、下側の板に塗布した場合、上側のハニカムの表面張力で引き上げられるが上側の板に塗布した場合、ハニカムに垂れ過ぎてしまう。100000mPa・s の粘度では、接着剤の流動がないために、フィレットの形成ができない。結果として

25000mPa·s 前後の粘度が適していることを確認した。

次に、選定した粘度が 25000mPa·s 接着剤について、ハニカムパネルを作製するにあたり、表面板に塗布して、ハニカムを接触させた時のできる塗布量、フィレットの形状、接着強度の関係について述べた。この時に、接着剤の削減と均質な接着剤の塗布を実現するために、櫛目ゴテを用いた塗布方法を採用している。この時のフィレットの形状と全面に均一塗布したときの比較について述べた。クライミングドラムピールを指標とした時、およそ 40%の接着剤の塗布量が削減できることがわかった。

文献

1. Noguchi. H., "Application & Function of Honeycomb Structure", CMC Publishing Co.,Ltd.
42 (2008)
2. Mastuura N., Imaizumi K., Amano K., Otsuka T., Kita J., Ito Y., Kuniyara Y., Wada T., *Japan Society For Finishing Technology* 1993 annual meeting 157(1993)

第3章

SGA 接着剤のサンドイッチパネルへの塗布方法と評価方法に対する影響差

1.緒言

ハニカムでは周知のようにコアの周辺の接着剤のみが強度測定に寄与する⁽¹⁾。そのためハニカムの周りの接着剤はフィレットとして形成される。接着フィレットの効率的な形成を考慮する必要がある。接着フィレット形成の高い効率の製造プロセスは、特定の塗布方法および適切な粘度によって達成される。接着剤の使用を減らすための以前の方法には、以下の2つの例が挙げられる。エポキシ樹脂において加熱時の樹脂の流動が適切な流動性を決め、ハニカムコアに対して良好なフィレットを形成する方法⁽²⁾や、主剤と硬化剤をそれぞれ表面板とハニカムコアに適用することである⁽³⁾。筆者らは、これらとは視点を変え確実性の高い構造で接着フィレットを効率的に形成するために、楕型のこてを用いストライプ状塗布に焦点を当てている⁽⁴⁾。しかしながら、ストライプ状の塗布方法は、ハニカムコアとの非接触領域、つまり接着の欠陥を含む。コアと接着剤の非接触領域に着目した過去の研究としては、曲げ特性と相関に関して調査されている⁽⁵⁾。しかし、ストライプ状の塗布法で形成された小さな接着欠陥を有するサンドイッチパネルについては、詳細な検討はまだなされていない。

我々の以前の研究では、ハニカムサンドイッチパネル上の接着剤下の剥離トルク試験および3点曲げ試験を減少させるための効果的な方法であることが確認された⁽⁶⁾。この章の研究では、ハニカムサンドイッチパネルの強度と剛性を測定するために、3点曲げ、クライミングドラムピール、フラットワイズを使用した。さらに、サンドイッチパネルの接着フィレットの形状および分布を、目視および顕微鏡下で観察した。上記の強度および剛性をさらに分析するために、接着フィレット形状に焦点を当てた。

2.実験

2.1 試験片の作製方法

試験片に使用する部材については Table3-1 にまとめた。

Table 3-1 Information of the material

	Surface plate	Honeycomb	Adhesive (296K property)
material	Peel A5052 H34 Bending A5052 H34 Fat-wise A5052-H32	Aluminum A3003-H19	Two part acrylic adhesive NS770 (Denki Kagaku Kogyo Co., Ltd) Storage modulus 0.9-1.0GPa Thixotropic index 1.8-1.9 Viscosity 26000-30000mPa・s
Surface treatment	Acetone defatting	No treatment (As received)	

曲げ試験に使用するハニカムサンドイッチパネル試験片とハニカムコアの形状と寸法を Fig.3-1 に示した。

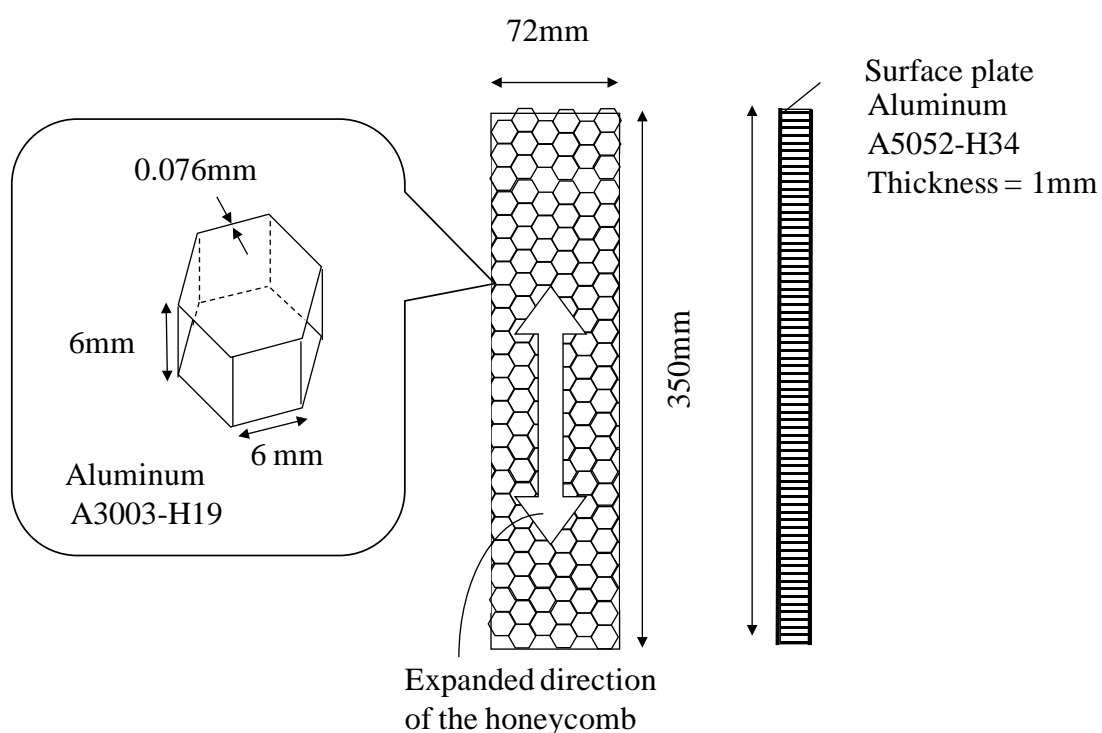


Fig.3-1 Shape and dimensions of honeycomb and specimens for bending test.

曲げ試験では表面板の材質はアルミニウム A5052-H34 で、厚さは上下面ともに 1.0mm、長さ 350mm、幅を 72mm とした。ハニカムの材質はアルミニウム A3003-H19 で、箔厚さ 0.076mm、

セルサイズ一辺 6mm, 高さ 6mm のものを用いた(Fig.3-1)。

曲げ試験用のハニカムと表面板の接着には室温硬化型の 2 液変性アクリル系接着剤 NS770M-25A/B (DENKA 製) を用いた。本接着剤は 2 章で使用したものと同様である。

表面板に接着を塗布し, 接着剤がハニカムに沿って上に這い上がるように, 接着時に下側に置いて, その上にハニカムと当板を乗せた。接着作業は次のように行った。

(1)作業環境は $22\pm 2^{\circ}\text{C}$ で行った。

(2)表面板および当板をアセトン脱脂後, 接着剤を測定板および当板に塗布した。接着剤の混合は, 内径 4mm の 12 コマスタティックミキサーで行った。

(3)上下の表面板には, 櫛目ごてもしくはドクターブレードで接着剤を広げた。

(4) 接着剤を塗布した表面板でハニカムコアを挟んで重石を載せて定盤上で静置し, 平均荷重 2.16kPa を印加して保持した。

(5) 室温で 3 時間以上養生後, 接着した反対側の板にも同様に接着剤を塗布して定盤上におき, その上から表面板とハニカムコアを片側だけ接着したものを載せる。その後重石を載せて静置し, 平均荷重 2.16kPa を印加して保持した。

(6) 23°C で 24 時間以上養生後, 硬化ばらつきを減らすために 60°C 2 時間の追加の加熱を行った。

クライミングドラムピール試験の試験片は表面板の材質はアルミニウム A5052-H34 で, 厚さは剥離側が 1.0mm, 長さ 300mm, 幅を 75mm とした。当て板側は 2.0mm, 長さ 240mm, 幅を 75mm とした。ハニカムの材質はアルミニウム A3003-H19 で, 箔厚さ 0.076mm, セルサイズ一辺 6mm, 高さ 8mm のものを用いた(Fig.3-2)。曲げ試験用のハニカムと表面板の接着には室温硬化型の 2 液変性アクリル系接着剤 NS770M-25A/B (DENKA 製) を用いた。

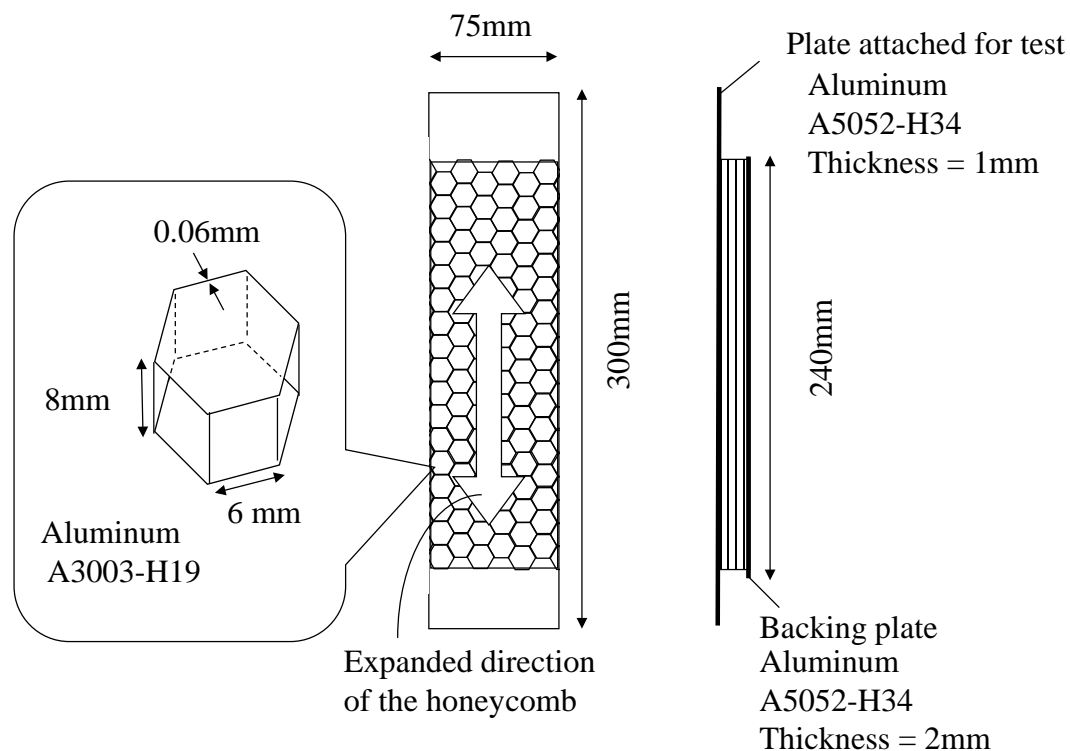


Fig. 3-2 Shape and dimensions of honeycomb and specimens for peeling test.

フラットワイズ試験の試験片は上下とも表面板の材質はアルミニウム A5052-H34 で、厚さは剥離側が 1.0mm、長さ 50mm、幅を 50mm とした。ハニカムの材質はアルミニウム A3003-H19 で、箔厚さ 0.076mm、セルサイズ一辺 6mm、高さ 6mm のものを用いた(Fig.3-3)。フラットワイズ試験用のハニカムと表面板の接着には室温硬化型の 2 液変性アクリル系接着剤 NS770M-25A/B (DENKA 製) を用いた。ハニカムコアと表面板の接着および、工程は曲げ試験の作製と同様の手順で行った。その後、フラットワイズ様の試験治具に DENKA 製の 2 液変性アクリル接着剤 C355-20 で接着した。試験治具の形状は高さ 50mm、長さ 50mm、厚み 50mm である。上から 20mm の位置に直径 14mm、長さ 50mm の貫通穴が開いており、試験機と連結する時にはここに鉄製のピンを通す。試験での偏りを減らすために、この直径 14mm、長さ 50mm の穴が上側と下側で直交するようにハニカムサンドイッチパネルに接着する。

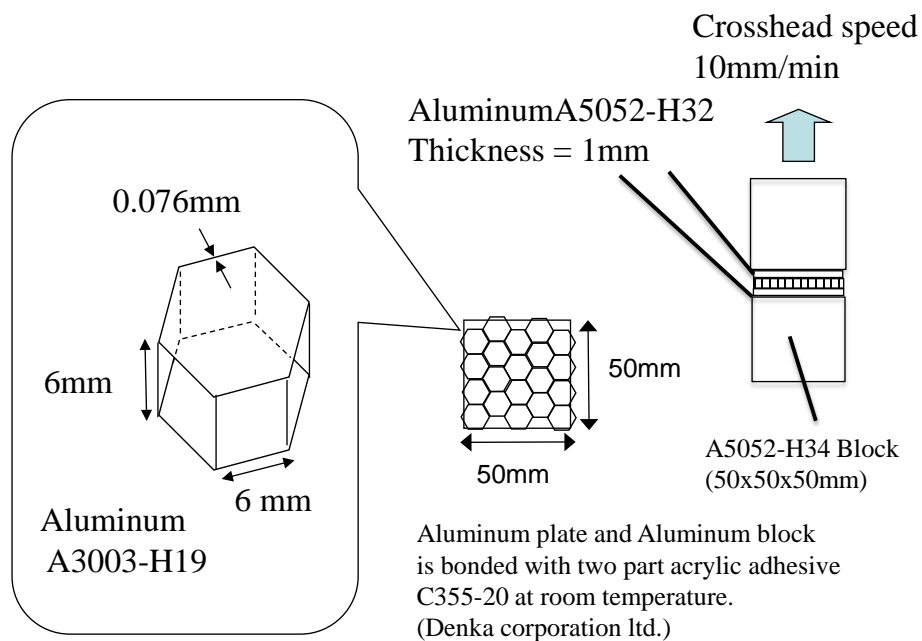


Fig.3-3 Shape and dimensions of honeycomb and specimens for flat-wise test.

表面板への接着剤の塗布は次の2種類の塗布方法を実施する。

(1) 櫛目ごて(Comb type trowel)によるストライプ状塗布

Fig.3-4 に、ストライプ状塗布に用いた櫛目ごての形状と寸法を示した。櫛目ごての溝の形状は底辺が 2mm の三角形であり、溝形状の三角形の高さを溝深さ H とし、これを 0.86mm から 2.0mm までの4条件変化させた。溝のピッチ P は 5mm から 15mm までの4条件変化させた。櫛目ごてはおよそ 50mm/秒の速度で移動させた。角度は殆ど垂直に立てている。角度としては 90~95 度程度である。櫛目ごてを引く方向は表面板の長手方向であり、ハニカムコアの展長方向と同じである。

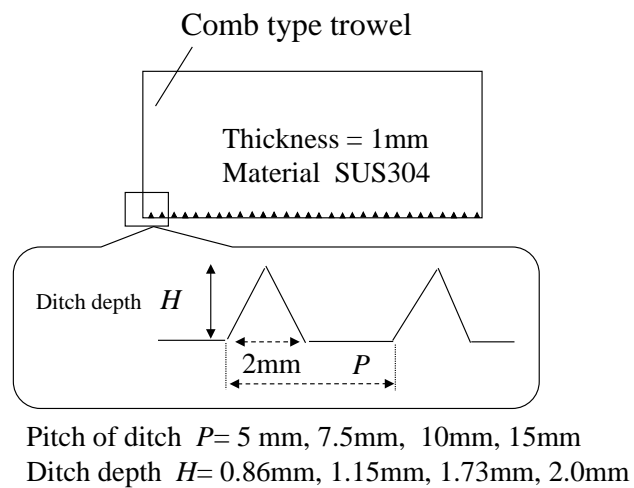


Fig.3-4 Shape and dimensions of comb type trowel

(2) 全面均一塗布

ドクターブレードを用いて接着剤を均一に広げた。塗布後の接着剤層の厚さは 0.17mm から 0.35mm までの 4 条件変化させた。

2.2 クライミングドラム剥離試験

接着強度は、Fig.3-5 に示すクライミングドラム剥離試験方法（ASTM D1781）に準じて、クロスヘッド速度 25mm/min，測定温度 23℃で測定した。測定サンプル数は $n=3$ とした。平均剥離荷重 P_b から，（3-1）式より平均剥離トルク M を算出した。

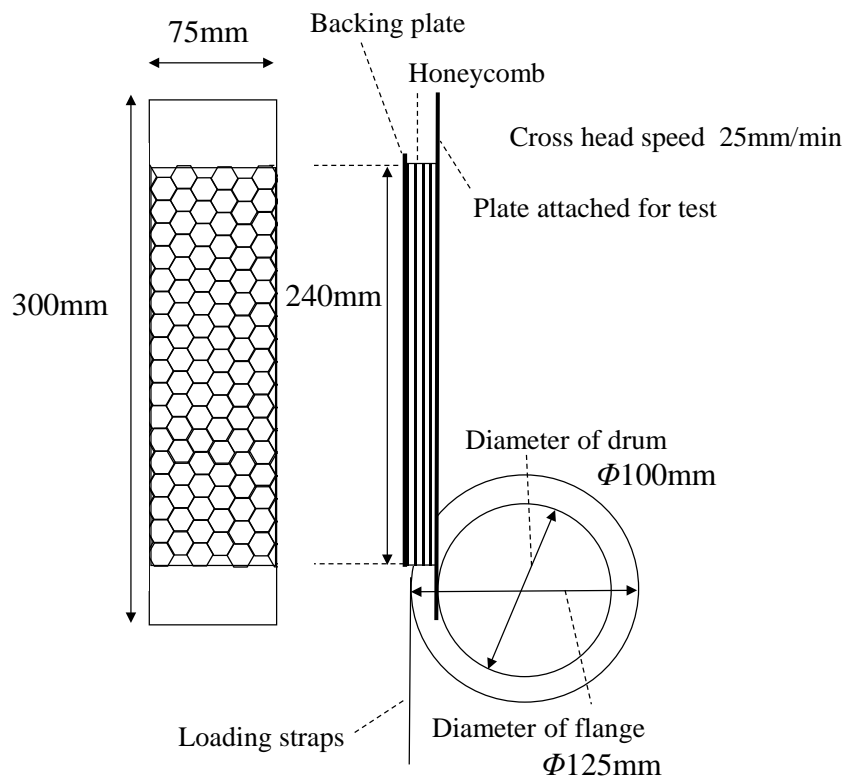


Fig.3-5 Specimen and peeling apparatus.

$$M = \frac{(P_b - P_0) \times (D - d)}{2b} \quad (3-1)$$

M : 平均剥離トルク (N・mm/mm)

P_b : 平均剥離荷重(N)

P_0 : 抵抗荷重(N)

(1.0mm 厚さのアルミ板のみの巻き取り荷重 : 実測値 255.8N)

D : ベルトの巻上げ直径(125mm)

d : 測定板の巻取り直径(100mm)

b : 測定板の幅 (75mm)

2.2 サンドイッチパネルの 3 点曲げ試験

曲げ剛性と曲げ強度は支点間距離を 300mm にして、支点が回転するように Fig.3-6 に示す方

法で、クロスヘッド速度 1mm/min, とした。測定温度 23℃で測定した。変位の計測は試験片の圧縮箇所の下側の中央部をダイヤルゲージで計測した。ダイヤルゲージでの変位の値を δd とする。試験荷重 F と変位 δd , δc から, (3-2) 式, (3-3)式より曲げ剛性 EI を求め, 試験片の幅で除して幅あたりの値で規格化した値を算出した。また, 測定の最大荷重および変位荷重曲線が直線的でなくなる点の荷重を降伏値とみなし, これらを評価の指標とした(Fig.3-7)。測定サンプル数は 3 とした。

$$\text{Equation} \quad \frac{EI}{w} = \frac{(F \times L^3)}{\delta_d \times 48} \quad (3-2)$$

$$\text{Equation} \quad \frac{EI}{w} = \frac{(F \times L^3)}{\delta_c \times 48} \quad (3-3)$$

EI : 曲げ剛性(N・mm²)

F : 荷重(N)

L : 支点間距離(300mm)

δd : サンプル下のダイヤルゲージでの変位(mm)

δc : クロスヘッドの変位(mm)

w : 試験片の幅 (72mm)

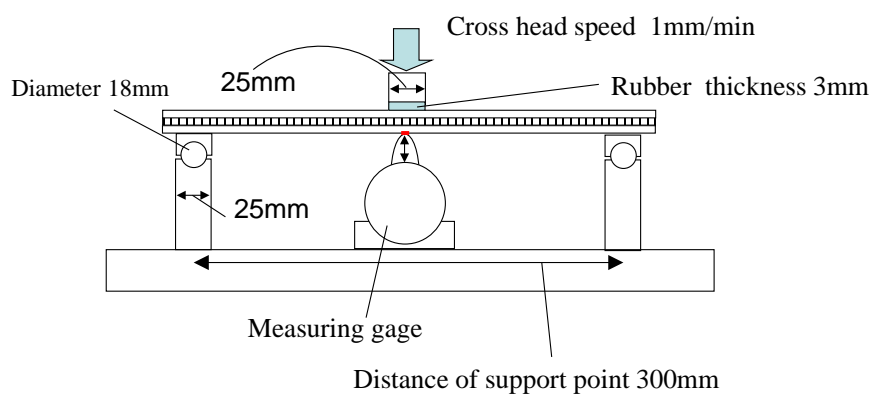


Fig.3-6 Specimen and bending apparatus.

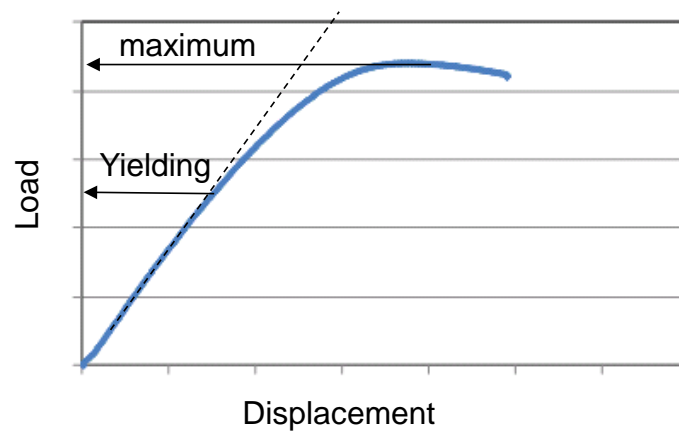


Fig. 3-7 Evaluation point at bending test and flat-wise test.

2.3 フラットワイズ試験

Fig.3-8 には，フラットワイズ試験の図を示す。試験片は，アルミニウム A5052 製のブロックに DENKA 製の 2 液反応型アクリル接着剤ハードロック C355-20 で接着された。クロスヘッドの速度は 10mm/min で実施した。測定数は 3 とした。フラットワイズ試験のサンプル作製は ASTM-C297 を参照した。試験時の評価は，曲げ試験のとき測定の最大荷重および変位荷重曲線が直線的でなくなる点の荷重を降伏値とみなし評価の指標とした。フラットワイズ試験では最大値と降伏値に殆ど差が無かったため，降伏値を本報告では使用する。

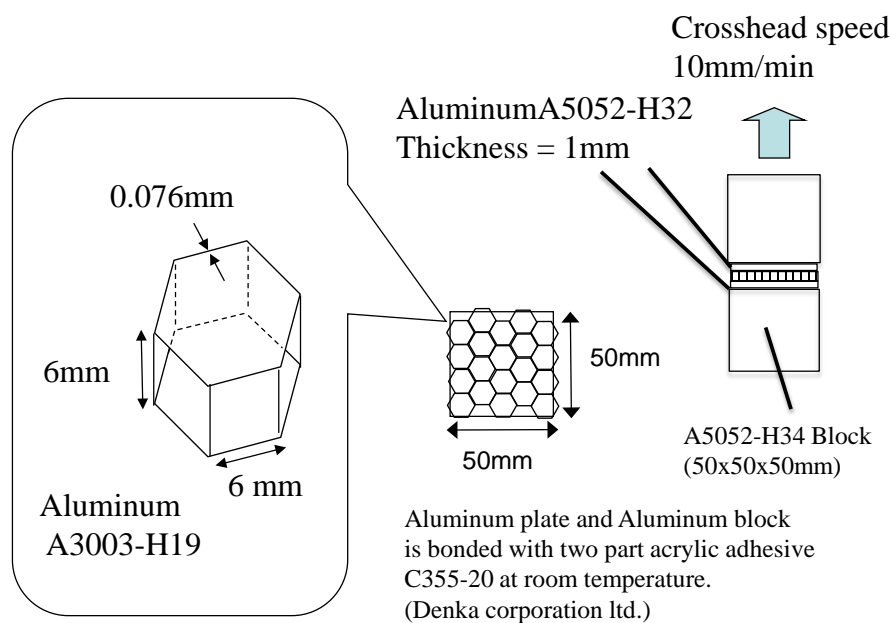


Fig.3-8 Shape and dimensions of honeycomb and specimens for flat-wise test.

3つの試験方法の仕様については Table3-2 にまとめを示す。

Table 3-2 Measuring method

Method	Climbing drum peel	Three point bending	Flat-wise
Test detail	Accordance with ASTM D1781 and Fig.3-5	Accordance with Fig.3-6	Accordance with ASTM C297 and Fig.3-7
Specimens configuration	75x300x11mm	72x350x8mm	50x50x8mm
Test speed	25mm/min	1mm/min	10mm/min
Test temperature	296±2K	296±2K	296±2K

3.結果と考察

実験条件と結果を Table 3-3 に集約する。ほぼ同じ量を塗布した 2 つの条件を比較していく。

Table 3-3 Experimental condition and results

	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
Dispensing condition	Depth of ditch <i>H</i>	Interval of ditch <i>P</i>	amount of dispensing adhesive	Adhesive contacting ratio for honeycomb	Maximm height of adhesive fillet	Bending yielding load	Bending maximum load	Bending stiffness	Peel torque	Flatwise yielding load
	(mm)	(mm)	(g/m ²)	(%)	(mm)	(N)	(N)	(N·mm ² /mm)	(N·mm/mm)	(N)
A	2	5	199-225	83.8	0.86-0.89	437	663	11.3×10^5	23.7	3267
B		7.5	130	55.9		270	388	8.92×10^5	16.2	2150
C		10	95	41.9		185	262	7.26×10^5	13.1	1723
D		15	71	27.9		122	185	5.95×10^5	8.3	1460
E	2	5	199-225	83.8	0.86-0.89	437	663	11.3×10^5	23.7	3267
F	1.73		184	74.5	0.8-0.89	354	586	11.1×10^5	19.5	2983
G	1.15		136	62.3	0.64-0.71	328	489	10.1×10^5	10.2	2583
H	0.86		109	56.8	0.55-0.56	268	410	9.87×10^5	10.0	2367
I	Dispensing flatly	394-419		100.0	0.86	620	829	12.4×10^5	43.0	4933
J		222-229		100.0	0.68	448	687	11.3×10^5	12.6	3800
K		130-144		100.0	0.47	206	313	10.3×10^5	6.5	3683
L		110		100.0	0.39	144	200	6.90×10^5	unmeasurable	2600

ストライプ状塗布の条件 A と全面均一塗布の条件 J は、接着剤の塗布量は共に 225g/m^2 の塗布量であり、曲げ試験の特性は等価な結果が得られた。しかし、ピールトルクはストライプ状塗布の条件 A は $23.7\text{Nmm}^2/\text{mm}$ で、全面均一塗布の条件 J では $12.6\text{Nmm}^2/\text{mm}$ であった (Table 3 3,6,8,9 列)。

次に、均一塗布での場合の比較を行う。上記に述べたように Fig.3-9 (a)は均一塗布時（条件 I.J.K.L）の 225g/m^2 を基準にしたときの接着剤塗布量と強度の比較を行っている。Fig.3-9 (b)は 225g/m^2 を基準にしたときにフィレットの最大高さや強度の比較を行っている。フィレット高さが増すにつれ曲げの降伏値も単純に増加している。 110g/m^2 の塗布量の時は曲げの降伏値は 144N であり 225g/m^2 を基準にした時の値 (448N) のおよそ 31% の水準である。 110g/m^2 の時のフラットワイズの降伏値は 2600N であり 225g/m^2 を基準にした時 (3800N) の 68% の水準である。ピールトルクに関しては 110g/m^2 時は測定できなかった。一方、塗布量が多い条件 I の領域 (約 400g/m^2) では曲げ降伏値は 225g/m^2 塗布時の 138% であり ($620\text{N}/448\text{N}$)、フラットワイズ試験の降伏値は 130% ($4933\text{N}/3800\text{N}$) である。フラットワイズ試験は接着剤の量の変動に対して曲げ試験の降伏値と同様な挙動を示す。ピールトルクは、これら二つの試験とは異なる傾向を示す。この傾向のちがいは Fig.3-9 に明確に示されている。

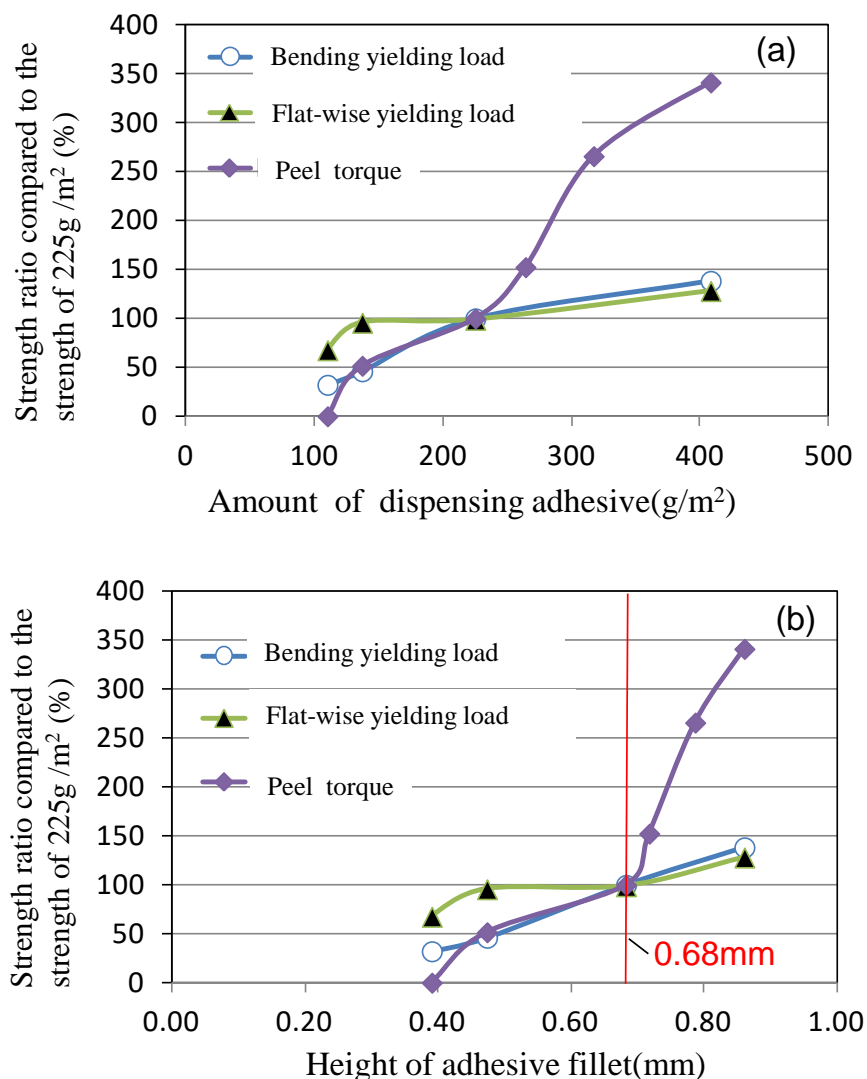


Fig.3-9 (a) Relationship of amount of dispensing adhesive and strength ratio compared to the strength of 225g /m².

(b) Relationship of fillet height and strength ratio comparison to the strength of 225g /m².

接着剤のフィレット形成部の断面観察結果例を Fig.3-10 に示す。ハニカムパネルの切断面を研磨し、光学顕微鏡で観察した。ハニカムの底面から 45 度の角度に長さを求める。これをフィレットの大きさの指標とする。また、実効的なフィレットの体積についても考える。Fig.3-10 に三角形に準じる形状を有効フィレット面積とした。横の長さはすべての試験片の横幅は表面板の横幅に等しい。それ故、実効的なフィレットの面積を比較する場合、実効的な体積を比較し

た場合もこの比率と同じとみなすことができる。これらの結果は Table 3-4 に示す。

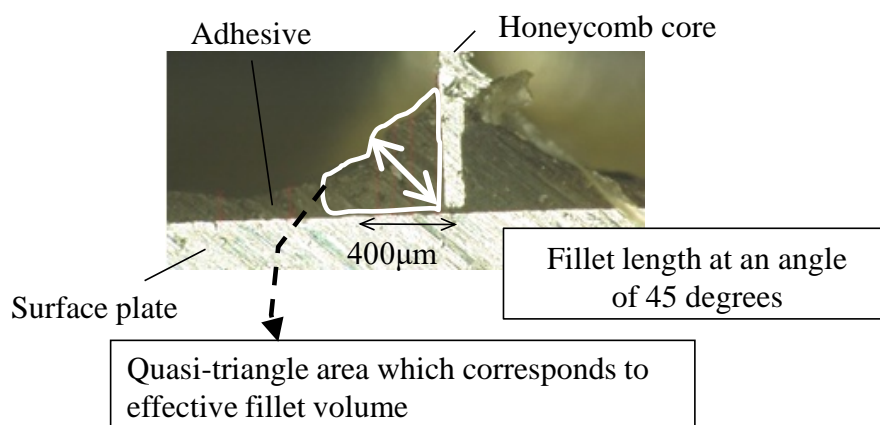


Fig.3-10 Cross section of adhesive fillet and definition of 45° fillet length and quasi-triangle area which corresponds to effective volume.

Table 3-4 Relationship among amount of dispensing adhesive,
Quasi-triangle area which corresponds to effective fillet
volume and fillet length at an angle of 45 degrees

Amount of dispensing adhesive (flatly dispensing)	Quasi-triangle area which corresponds to effective volume	Fillet length at an angle of 45 degrees
g/m ²	mm ²	mm
142	0.071	0.274
225	0.117	0.339
419	0.343	0.539

フラットワイズと曲げの降伏値は 45 度フィレットサイズに相関が有る(Fig.3-11(a))。一方でピールトルクは実効的な接着剤の体積と相関がある(Fig.3-11(b))。フラットワイズと曲げ試験はフィレットのサイズが降伏値に対して 1 次元の単調な影響を与えている。

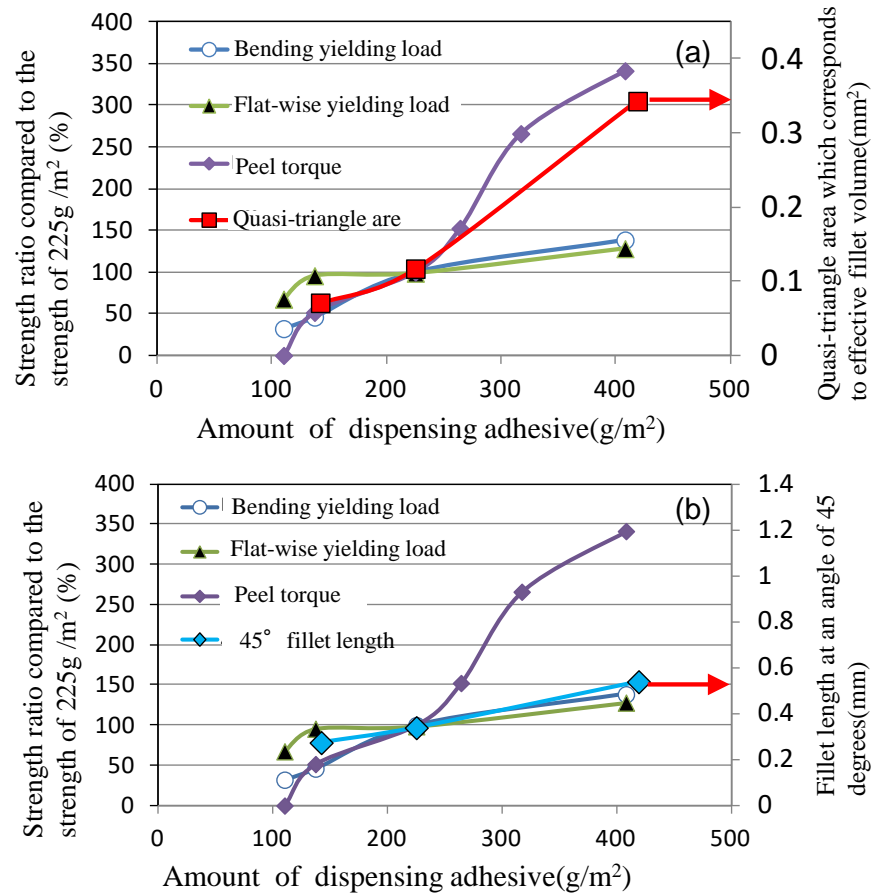


Fig.3-11 (a)Relationship among amount of dispensing adhesive, strength ratio compared

to the strength of $225\text{g}/\text{m}^2$, and the area corresponding to effective fillet volume.

(b)Relationship among amount of dispensing adhesive, strength ratio compared

to the strength of $225\text{g}/\text{m}^2$, and fillet length at an angle of 45 degrees.

接着箇所の影響する荷重の違いは、クライミングドラムおよび曲げ試験でそれぞれ示される (Fig.3-12)。ピール試験では接着フィレット面積の変形が大きい。フィレットの体積は、剥離トルクに対して線形の相関を有する。剥離試験では接着剤フィレットの変形の影響が大きい。フィレットの体積は剥離トルクに対して相関がある。

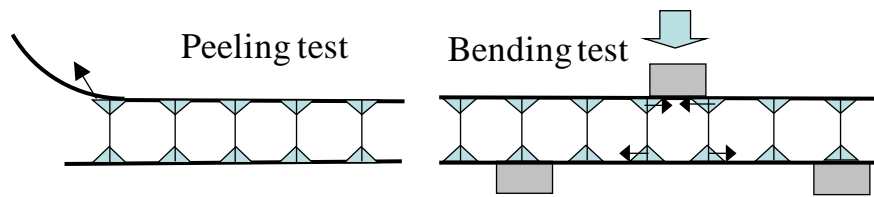


Fig.3-12 Schematic illustration of mechanical force around adhesive for bending and peeling test.

次に、ストライプ状塗布と全面均一塗布について議論する。条件 A と条件 J はほぼ同じ塗布量(A:199-225g/m², J:222-229g/m²)である(Table 3-3 3 列)。条件 A と J は同じ曲げ剛性(11.3×10^5 Nmm²/mm)と曲げ降伏値(A:437N, J:448N)を示す。ピールトルクは条件 A が条件 J より大きい値を示す(A:,23.7Nmm/mm J:12.6Nmm/mm)。フラットワイズ降伏値の比較では条件 A が条件 J より小さい値を示す(A:,3267N, J:3800N)。

フラットワイズ降伏値と接着剤の塗布量の関係は全面均一塗布とストライプ状塗布で異なっている。全面均一塗布では条件 J(塗布量：225g/m²)と条件 K(塗布量：130g/m²)は接着剤の量に有意な差があるが、フラットワイズ降伏値は条件 J が 3800N で条件 J が 3683N で差はわずかである。

条件 J と条件 K と同様の接着剤塗布量の関係は、ストライプ状塗布の条件下では条件 A と条件 B で設定している(A:199-225g/m², B:130g/m²)。条件 A ではフラットワイズの降伏値は 3267N であるが、条件 B では 2150N であり全面均一塗布よりも接着剤塗布量の減少に対する降伏値の低下が大きい。

ストライプ状塗布の櫛目ごとの溝のインターバルの幅は、接着剤とハニカムの接触比率に対して影響が大きい。条件 A はアルミハニカムとの接触比率は 83.8%であるが、条件 B は 55.9%である。一方、全面均一塗布の場合、全体に塗っているので、アルミハニカムと接着剤の接触比率は 100%である。接着剤の欠損部の影響はフラットワイズ試験で明らかに影響している。曲げ試験の結果も、接着剤のハニカムへの接触比率に関連がある。曲げ剛性と曲げ降伏荷重の

両方は接着剤とハニカムの接触比率に対して単調に増加する (Fig.3-13, Fig.3-14)。

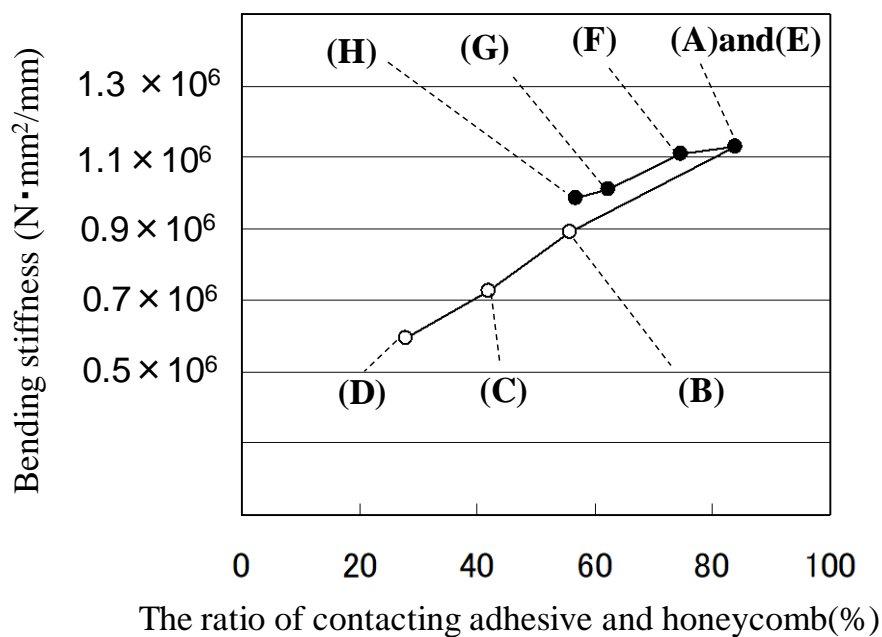


Fig.3-13 Relationship among dispensing condition, bending stiffness, and the ratio of contacting adhesive to the honeycomb.

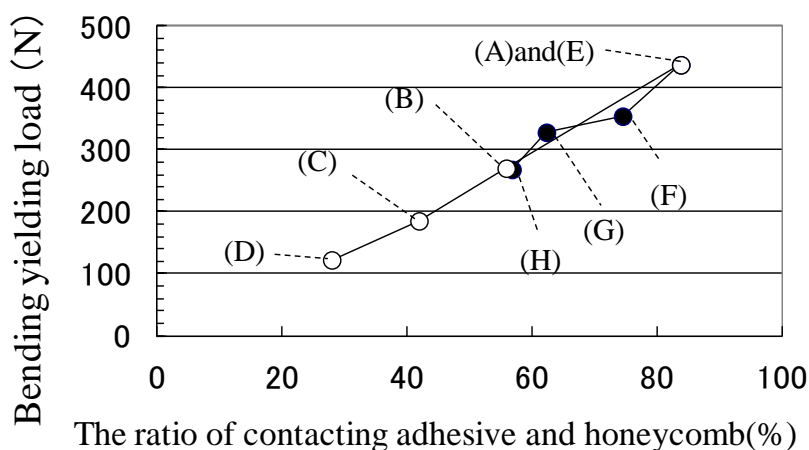


Fig.3-14 Relationship among dispensing condition, bending maximum load, bending yielding load and the ratio of contacting adhesive to the honeycomb.

条件 B と条件 H の比較を考察する。条件 B は塗布量が 130g/m^2 でハニカムとの接触面積比率が 55.9%である。条件 H は塗布量が 109g/m^2 で条件 B より少し少ないものの、ハニカムとの接

触面積は 56.8%と条件 B と殆ど同じである。条件 B はストライプ状塗布を行うときのストライプのインターバルが 7.5mm であり、条件 H はインターバルが 5mm である。条件 B の曲げ試験の結果は 8.92×10^5 の曲げ剛性で、388N の曲げ降伏値を示している。条件 H は曲げ剛性は 9.87×10^5 で、410N の曲げ降伏値を示している。

条件 H はインターバルが条件 B より狭い。ハニカムと接触していない箇所の大きさは条件 B のほうが大きくなると考えられる。この差が剛性に影響したものと推定される(Fig.3-15)。

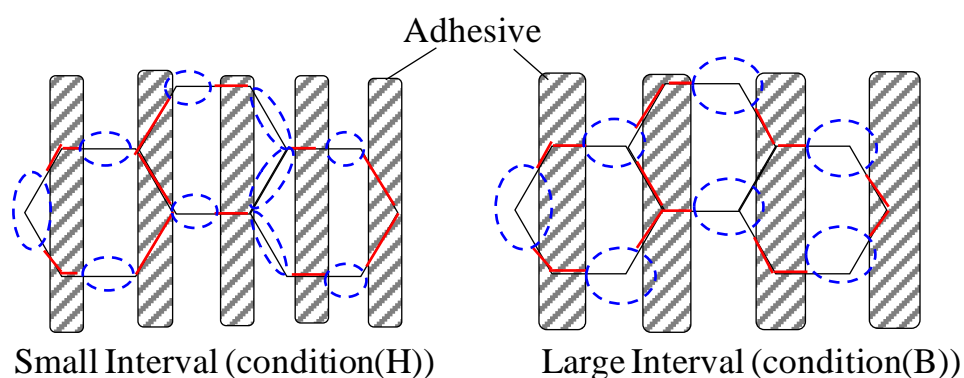


Fig.3-15 Schematic illustration of contacting adhesive to honeycomb at dispensing with the different ditch interval comb type towel.

ストライプ状塗布の条件 A と全面均一塗布の条件 J は同じ曲げ剛性と類似の曲げ降伏値の荷重を示す。接着剤とハニカムの接触比率が 83.8%有していれば、剛性と降伏値の点では十分である(Fig.3-16)。接着剤の欠損部の存在は曲げ剛性に影響するものの、実際に接着剤を活用していく上ではストライプ状塗布は全面均一と付より優れている面も備わっている。

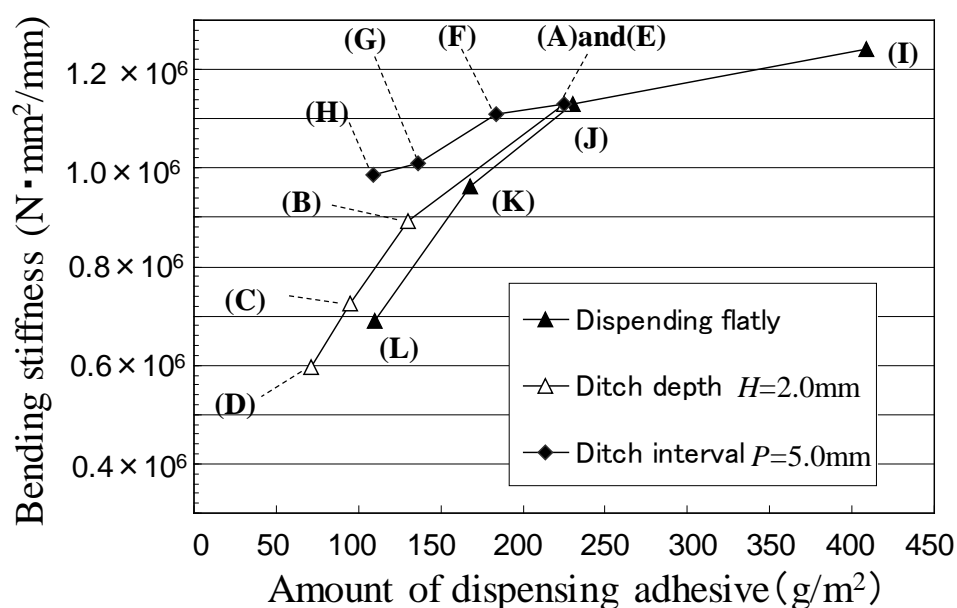


Fig.3-16 Relationship between dispensing condition and the bending stiffness.

4. 結言

ハニカムサンドイッチパネルにおいて、ストライプ状塗布はクライミングピールトルクの点で全面均一塗布より優位性がある。また、接着剤の塗布量が 110g/m^2 と 225g/m^2 の範囲では曲げ試験における特性でもストライプ状塗布が全面均一塗布より良い結果を示す。特にこの塗布領域でストライプ状塗布は有効である。接着剤のフィレットの役割は下記の2つと結論される。有効なフィレットの体積はクライミングピールトルクに影響し、フィレットの45度長さは曲げ試験とフラットワイズ試験に影響する。接着剤の未塗布部（ハニカムと接触していない箇所）の影響は、フラットワイズでは大きい、曲げ試験では影響はフラットワイズ試験ほど大きくない。一方で、未塗布部の影響はピールトルクでは小さい。フラットワイズ試験では均一塗布がストライプ状塗布より有効である。これは接着剤の欠損部の存在のためである。実使用時にはハニカムサンドイッチパネルにかかる荷重の種類を考慮する必要があるが、ストライプ状塗布は使用量削減だけでなく高い曲げ剛性と曲げ降伏値を得るために有効な手法である。

文献

1. Noguchi. H., "Application & Function of Honeycomb Structure", CMC Publishing Co.,Ltd. 42 (2008)
2. Fukasawa Y., Japan Patent Kokai Hei2-78536 (1990)
3. Hatayama A., *et al.*, Japan Patent Kokai 2001-89718 (2001)
4. Mastuura N., Imaizumi K., Amano K., Otsuka T., Kita J., Ito Y., Kunihara Y., Wada T., *Japan Society For Finishing Technology* 1993 annual meeting 157(1993)
5. S. Kuroki *et al.*, *The Japan society of mechanical engineers* 14th conference on Materials and Processing 196 (1996)
6. Kamiyama K., Haraga K., *Journal of the adhesion society of Japan* **47**, 220 (2011)
7. Kamiyama K., *Journal of the adhesion society of Japan* **53**, 88(2014)

第 4 章

SGA 接着剤を用いたハニカムサンドイッチパネルの
破壊箇所同定と接着剤の破壊エネルギーの関係

1.緒言

ハニカムサンドイッチパネルは、軽量でかつ剛性が高いことから航空機をはじめ、宇宙用機器、鉄道車両、建築材など様々な用途で用いられてきたが⁽¹⁾、機器の軽量化による省エネが求められている昨今、ハニカムパネルのコストダウンにより、新たな汎用機器用途への適用拡大が期待されている。ハニカムサンドイッチパネルは、ハニカム、表裏の表面板、接着剤、フレーム材が主要な構成部材であるが、接着剤自体の価格や加熱硬化に伴う接着加工費用がパネル価格の大きな割合を占めており、接着剤の塗布量削減と加熱レス化が重要な課題である。筆者はこの問題を解決する方法として、室温硬化型のアクリル系接着剤を表面板にストライプ状に塗布して接着剤を低減することを提案し、パネルの各種強度との比較を行うことでその有用性を確認している^(2,3)。

3章では、アルミハニカムサンドイッチパネルの接着剤の剥離トルク、フラットワイズ降伏値、曲げ剛性、曲げ降伏値について接着剤のフィレット形状との関係について検証してきた。本章では、ハニカムサンドイッチパネルの破壊の過程の状況や、接着剤の粘弾性体としての性質がハニカムパネルの曲げ試験においてどのような関係性を示すかを検証する。また、これまでにストライプ状塗布による接着剤の使用量削減について述べてきているが、付随して生じる接着欠陥についてもその影響度も改めて考察する。

本章以降では、具体的な測定手法として、曲げ試験時に部材の変形や破壊挙動を弾性波として検出することができるアコースティックエミッション(AE)を利用する。

特に、ハニカムサンドイッチパネルの破壊箇所の同定には、部材の変形や破壊挙動を弾性波として検出することができるアコースティックエミッション法における到達時間差法を活用する^(4,5)。アコースティックエミッションを用いた研究では弾性波のシグナル強度や積算エネルギーの変化とサンドイッチパネルの強度試験における荷重変化を関連づけることで、破壊箇所の同定方法としての有効性が認められている⁽⁶⁾。本研究ではストライプ状に接着剤を塗布するため、部分的な接着欠陥が存在する。その影響度を調査するためにアコースティックエミッションに

よる破壊の検出は適していると考えられる。

本研究はサンドイッチパネルの工業的な実用性向上に加え、破壊現象の定量化と数理モデルの解析手法を組み合わせた高精度の接着設計技術構築も目指している。接着体の設計や強度の予測手法として **Cohesive Zone Model** などの数理モデルが挙げられ^(7,8), サンドイッチパネルに対してもその適用検討が進んでいる⁽⁹⁾ これらを行うためには解析の精度を高めていくために高い測定データが必要になる。その観点から接着剤のエネルギー解放率などの接着剤の基礎物性とハニカムパネルの連動を考察して行くために破壊挙動の関連性の調査もあわせて実施した。

2. 実験

2.1 試験片の形状と作製方法

曲げ試験に使用するハニカムサンドイッチパネル試験片とハニカムコアの形状と寸法を Fig. 4-1 に示した。

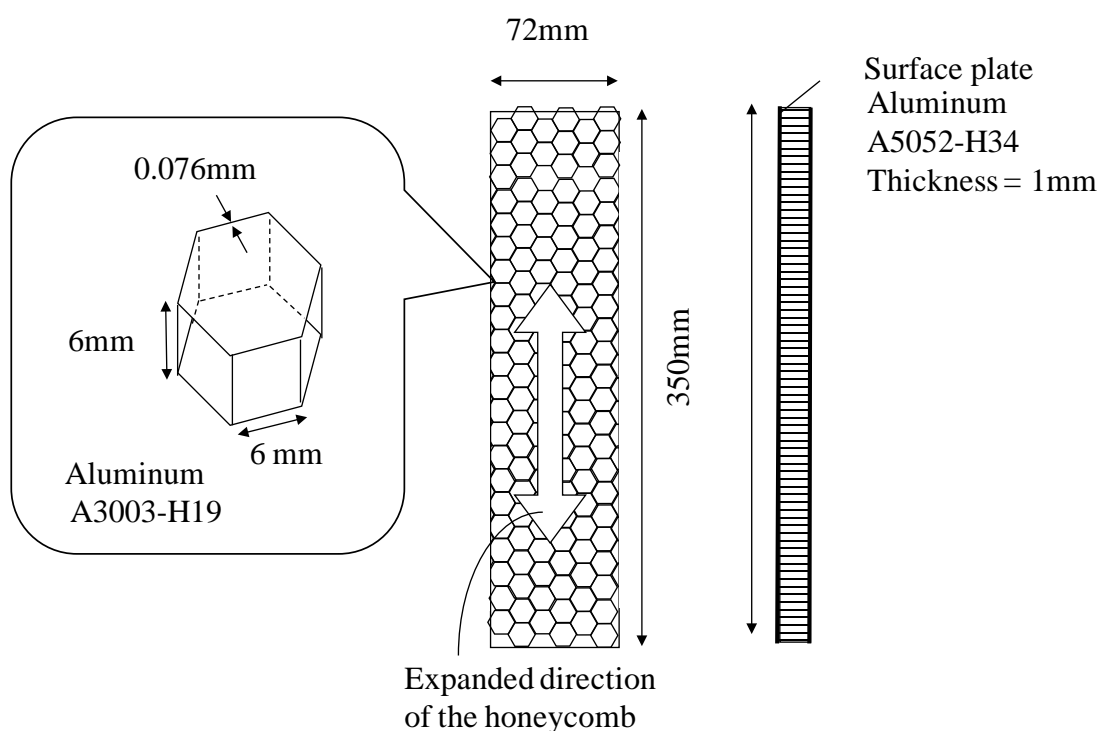


Fig. 4-1 Shapes and dimensions of honeycomb and specification of the constituent materials.

曲げ試験では表面板の材質はアルミニウム A5052-H34 で、厚さは上下面ともに 1.0mm, 長さ 350mm, 幅を 72mm とした。ハニカムの材質はアルミニウム A3003-H19 で、箔厚さ 0.076mm, セルサイズ一辺 6mm, 高さ 6mm のものを用いた。

曲げ試験用のハニカムと表面板の接着には室温硬化型の 2 液変性アクリル系接着剤 NS770M-25A/B (DENKA 製)を用いた。23℃における粘度は 26000～30000mPa・s, チキソ指数は 1.8～1.9, 液比重は 1.0, 可使時間は 18 分, 初期固着時間は40 分である。サンドイッチパネルの作製手順は以下のとおりである。

表面板に接着を塗布し、接着剤がハニカムに沿って上に這い上がるように、接着時に下側に置いて、その上にハニカムと当板を乗せた。接着作業は次のように行った。

- (1)作業環境は 22±2℃で行った。
- (2)表面板および当板をアセトン脱脂後、接着剤を測定板および当板に塗布した。接着剤の混合は、内径 4mm の 12 コマスタティックミキサーで行った。
- (3)上下の表面板には、櫛目ごてもしくはドクターブレードで接着剤を広げた。
- (4) 接着剤を塗布した表面板でハニカムコアを挟んで重石を載せて定盤上で静置し、平均荷重 2.16kPa を印加して保持した。
- (5) 室温で 3 時間以上養生後、接着した反対側の板にも同様に接着剤を塗布して定盤上におき、その上から表面板とハニカムコアを片側だけ接着したものを載せる。その後重石を載せて静置し、平均荷重 2.16kPa を印加して保持した。
- (6) 室温で 24 時間以上養生後、硬化ばらつきを減らすために 60℃, 4 時間の追加の加熱を行った。

2.2 サンドイッチパネルの種類

次の 3 種類の試験片を作製した。

- (1) 表面板全面にストライプ状塗布を行った試験体

櫛目ごての溝の形状は底辺が 2mm の三角形であり，溝形状の三角形の深さを 2.0mm とし，溝のインターバルは 5mm に設定した。櫛目ごてにより形成されるストライプの方向は，試験片の長さ方向と平行な向きにした。塗布量はおよそ 225g/m^2 であった。この櫛目ごてで接着剤を広げて接着剤をハニカムと硬化させると，接着剤のフィレット高さは最大で 0.89mm，フィレットの幅はおよそ 5.2mm，ハニカムとの接触面積率は 83.8% になる。Fig. 4-2 に，ストライプ状塗布に用いた櫛目ごての形状と寸法と接着剤フィレットの広がり状況を記す。この方法によって作製したサンプルを以降，全面ストライプ状塗布サンプルと呼ぶ。

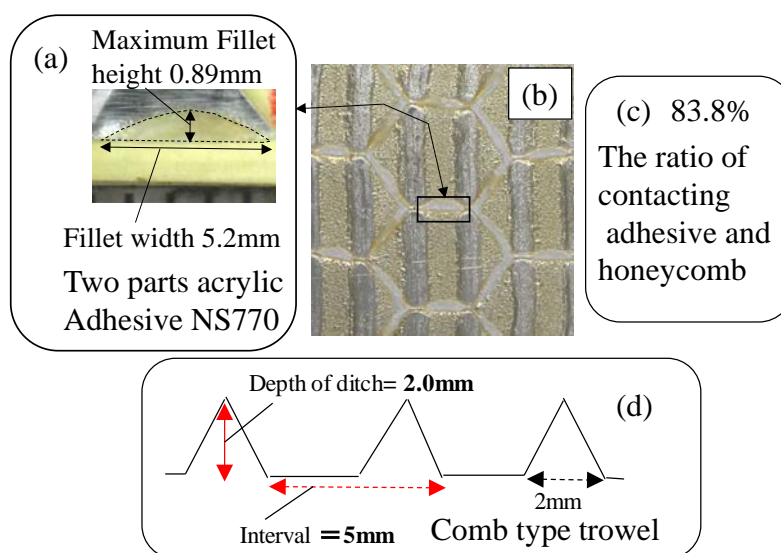


Fig. 4-2 Adhesive material formation state on the panel dispensed with comb type trowel.

- (a) Fillet height and fillet width
- (b) Aspects of adhesive around honeycomb core
- (c) The ratio of contacting adhesive and honeycomb core
- (d) Shape and dimension of comb type trowel

(2) 端部 25mm のみストライプ状塗布を行った接着体

前述のストライプ状塗布と同じ表面板,アルミハニカム,接着剤, 塗布方法を用いるが, 端部から 25mm のみ塗布する。中央部 $72 \times 300\text{mm}$ には接着剤がない状態のサンプルを作製した。この方法によって

作製したサンプルを以降、端部 25mm 接着サンプルと呼ぶ。

(3) 表面板の全面に均一塗布した接着体

ドクターブレード法を用いて接着剤を均一に広げた。塗布後の接着剤層が 225g/m^2 になるように調整した。この方法で作製したサンプルの最大フィレット高さは 0.86mm になる⁽²⁾。この方法で作製したサンプルを以降、全面均一塗布サンプルと呼ぶ。

接着塗布部を記した接着試験体の略図を Fig. 4-3 に示す。

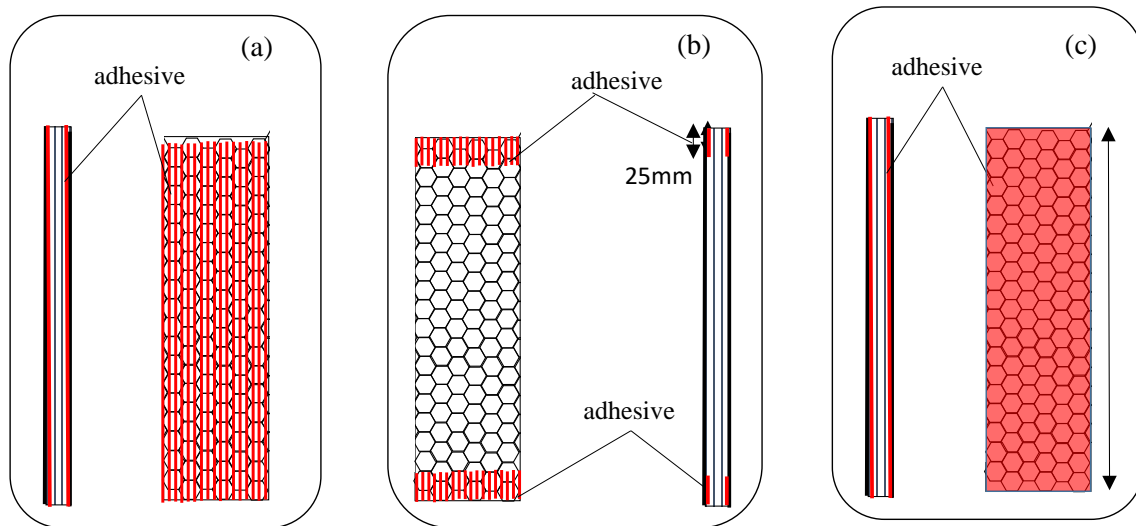


Fig. 4-3 Schematic illustration of dispensing adhesive on the sandwich panel.

(a) Striped dispensing adhesive on all surface plate

(b) Dispensing striped adhesive only 25mm from the edge of the plate

(c) 225g/m^2 flatly dispensing on all surface plate

2.3 傾斜付き2重片持ち梁法 (Tapered Double Cantilever Beam) の試験片

接着剤の破壊靱性を定量するために、傾斜付き2重片持ち梁法(Tapered Double Cantilever Beam)を用いた。以降この試験をTDCB試験と記す。材質はアルミニウムA5052-H34材を使用した。Fig. 4-4に示す試験片を用いた。接着する前にエタノールで被着体の表面脱脂を行い、接

着厚みはガラスビーズを少量添加することで0.25mmに調整した。クラック発生部位には0.01mmのステンレス板にシリコン離形処理を行ったものを用いた。接着剤の硬化条件はサンドイツパネルの作製と同じ条件で行った。

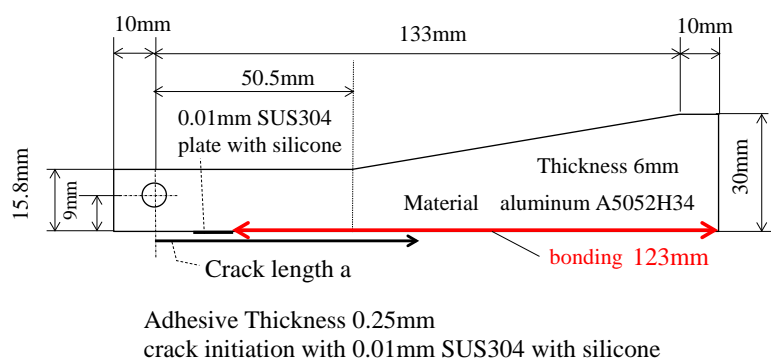


Fig. 4-4 Specification and constituent materials of tapered double cantilever beam (TDCB) specimen.

$$G_{Ic} = \frac{P^2}{2b} \frac{dC}{da} \quad (4-1)$$

P : 負荷加重(N)

b : サンプルの幅(6mm)

C : 試験体のコンプライアンス

a : クラック長さ(mm)

dC/da : FEM 計算から算出(4.52×10^{-5})

高い延性を伴うアクリル系接着剤ではクラック長さ a を精度良く安定して測定することには困難をとまなう。そのため、本報告では安定的に亀裂が進展する領域での測定結果を用いてモード I のエネルギー解放率との関係を考察することとした。式(4-1)に示される dC/da は過去の知見に準拠し、汎用の有限要素プログラムANSYSを用いて算出した⁽¹⁰⁾。具体的には1/2モデルとしてアルミニウム材のみをシェル要素によりモデル化を行った。(Fig. 4-5(a)) このとき、接着剤のモデル化は行わず、クラック先端より右側の接着の模擬として接着面に位置する節点に上下方

向の拘束を与え、荷重負荷点 (Fig. 4-5(a)の左端に設けた穴の上端) に荷重を与え、コンプライアンスを求めた。このクラック長さ a を変化させ、それぞれのコンプライアンスを求めた結果を Fig. 4-5(b)に示す。なお、TDCBのアルミニウム試験体のヤング率は70GPa、ポアソン比 $\nu=0.3$ とし、平面応力条件として解析を行った。FEM計算ではクラック長さを10mm毎にコンプライアンスの値を算出した。

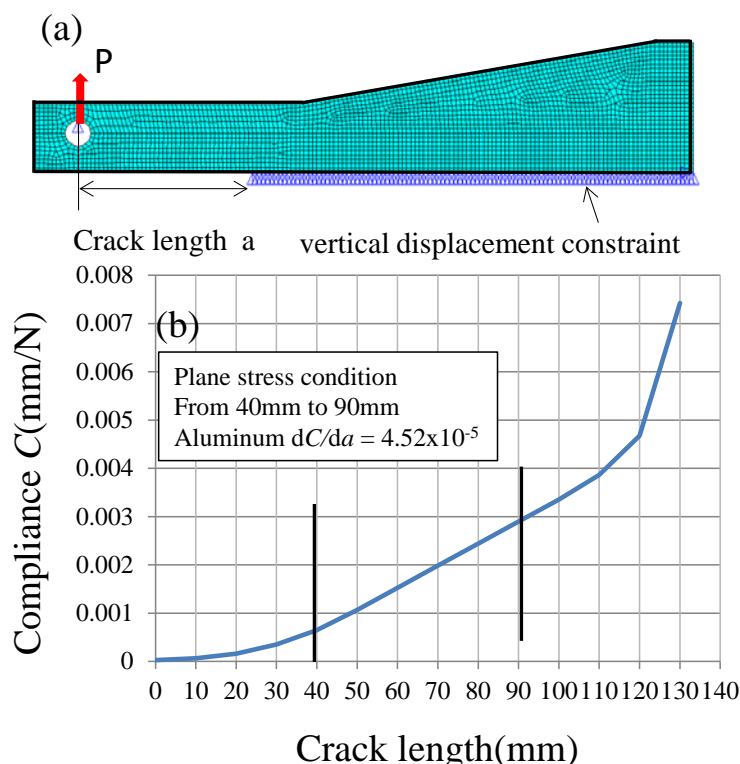


Fig. 4-5 (a) Analysis model and boundary condition for dC/da calculation.

(b) The stability of dC/da on a TDCB specimen calculated by elastic FEM analysis.

2.4 サンドイッチパネルの3点曲げ試験

曲げ剛性と曲げ強度は支点間距離を 300mm にして、支点が回転するように Fig. 4-6 に示す方法で、クロスヘッド速度 1mm/min, とした。測定温度 23°C で測定した。変位の計測は試験片の圧縮箇所の下側の中央部をダイヤルゲージで計測した。ダイヤルゲージでの変位の値を δ_d とする。試験荷重 F と変位 δ_d , δ_c から, (4-2) 式, (4-3) 式より曲げ剛性 EI を求め, 試験片の幅で

除して幅あたりの値で規格化した値を算出した。また、測定 of 最大荷重および変位荷重曲線が直線的でなくなる点の荷重を降伏値とみなし、これらを評価の指標とした(Fig. 4-7)。測定サンプル数は3とした。次項に示すアコースティックエミッションの設定以外は3章で述べた内容と同様の試験条件の設定である。

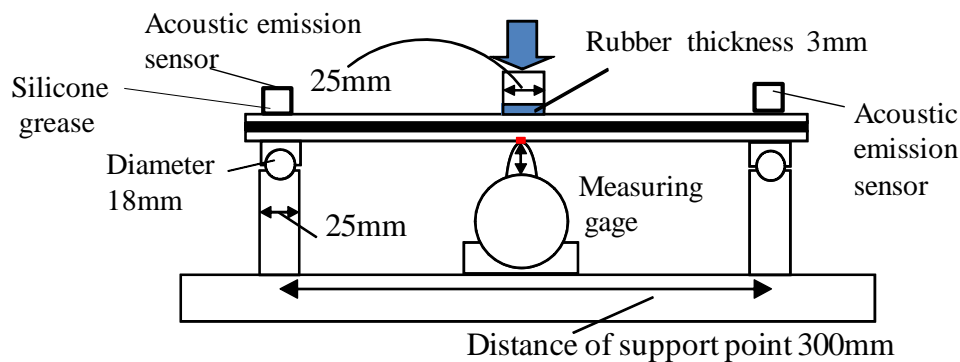


Fig. 4-6 Bending test and acoustic emission apparatus.

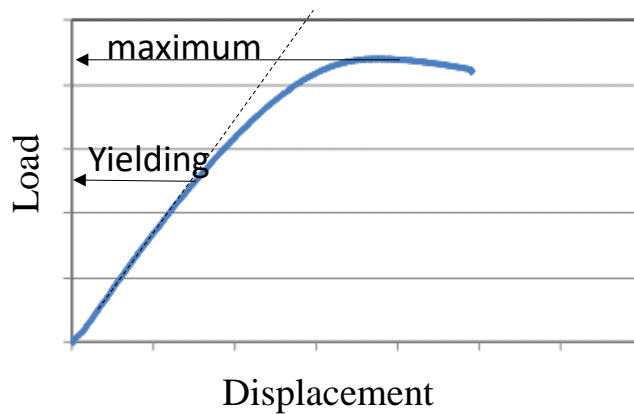


Fig. 4-7 Evaluation point at bending test.

Equation
$$\frac{EI}{w} = \frac{(F \times L^3)}{\delta_d \times 48} \quad (4-2)$$

Equation
$$\frac{EI}{w} = \frac{(F \times L^3)}{\delta_c \times 48} \quad (4-3)$$

EI : 曲げ剛性($\text{N}\cdot\text{mm}^2$)

F : 荷重(N)

L : 支点間距離(300mm)

δd : サンプル下のダイヤルゲージでの変位(mm)

δc : クロスヘッドの変位(mm)

w : 試験片の幅(72mm)

2.5 アコースティックエミッションの測定

アコースティックエミッションの測定は、Physical acoustics Ltd.の POCKET AE システムを使用した。測定周波数領域は $20\text{kHz}\sim 1\text{MHz}$ に設定する。 27dB をシグナルとノイズとを切り分ける閾値とする。使用した AE 受信部はアンプ内蔵型センサーであり、共振周波数 150KHz の PK-15I を用いた。表面板と受信部の弾性波伝達のカップラントはシリコングリースを用いた。AE 受信部は 3 点曲げの支点の位置の上で試験片の幅の中央部に設置した。

2.6 TDCB 試験の測定

TDCB 試験におけるクロスヘッド速度を 1mm/min , 10mm/min , 100mm/min で実施した。測定温度 23°C で測定した。測定サンプル数は $n=4$ とした。

2.7 動的粘弾性の測定

長さ 20mm , 幅 10mm , 厚み 1mm の測定範囲で測定できる樹脂バルク体を作製し、引っ張りモードにおいて接着剤の動的粘弾性の測定を実施した。周波数を $0.01\text{Hz}\sim 10\text{Hz}$ で変化させた。測定は温度 23°C で実施した。

3. 結果と考察

3.1. サンドイッチパネルの曲げ試験の測定結果

サンドイッチパネルの曲げ試験の結果を Fig. 4-8 に示す。ダイヤルゲージの変位 δd とクロスヘッドの移動量から求めた結果と変位 δc のから求めた結果に殆ど差はなく，エラーバーが示す測定ばらつきの範囲内である。試験速度に従って曲げ剛性，試験時の降伏荷重，試験時の最大値が単調に増すことがわかる。

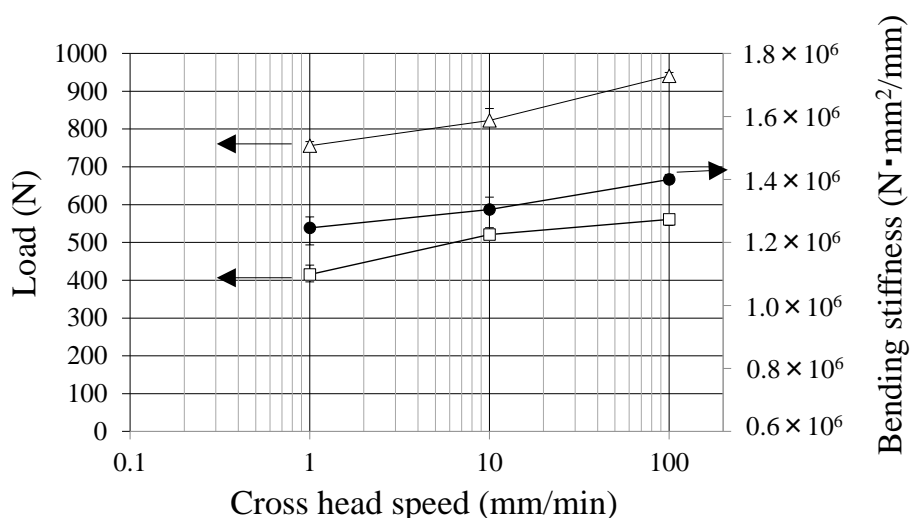


Fig. 4-8 Results of three points bending test.

●: Bending stiffness, △: Maximum load, □: Yielding load

3.2 TDCB 試験の測定結果

TDCB 試験の代表的な荷重－変位線図を Fig. 4-9 に示す。試験中に平坦部が出現する。この平坦部の荷重の平均値と前述の式 (4-1) 用いて，接着剤のモードIにおけるエネルギー解放率 G_{Ic} を算出する。試験速度にしたがって，平坦部の荷重も高まって行くことがわかる。また，測定中の試験体をデジタルカメラにて動画撮影を行い，拡大した画像から読み取った接着部のクラック長さを測定した結果の代表例を Fig. 4-9(a)の中に示す。式(1)の dC/da の安定的な領域と計算しているクラック長さ a が 40mm 以上の範囲で荷重は安定していることがわかる。TDCB 試験における破壊モードは，すべての条件で凝集破壊 100%である。Fig. 4-10 には試験速度を変

えたときの TDCB 試験から算出した G_{Ic} の関係を示す。4 測定の平均値は試験速度 1mm/min において 952 J/m^2 ，10mm/min において 1128 J/m^2 ，100mm/min において 1313 J/m^2 である。試験速度とともに G_{Ic} が増すことがわかる。TDCB はテーパーのない DCB に比べて亀裂の安定亀裂でない領域でエネルギー解放率を特定するのに適した方法とは言えないが，安定亀裂領域ではない箇所についても計算から得られた dC/da の値を用いて G_{Ic} の値の算出を試みた。亀裂発生初期段階では，安定領域に到達した時のおよそ 50%～60%程度の G_{Ic} の値を示している(Fig. 4-9(b))。

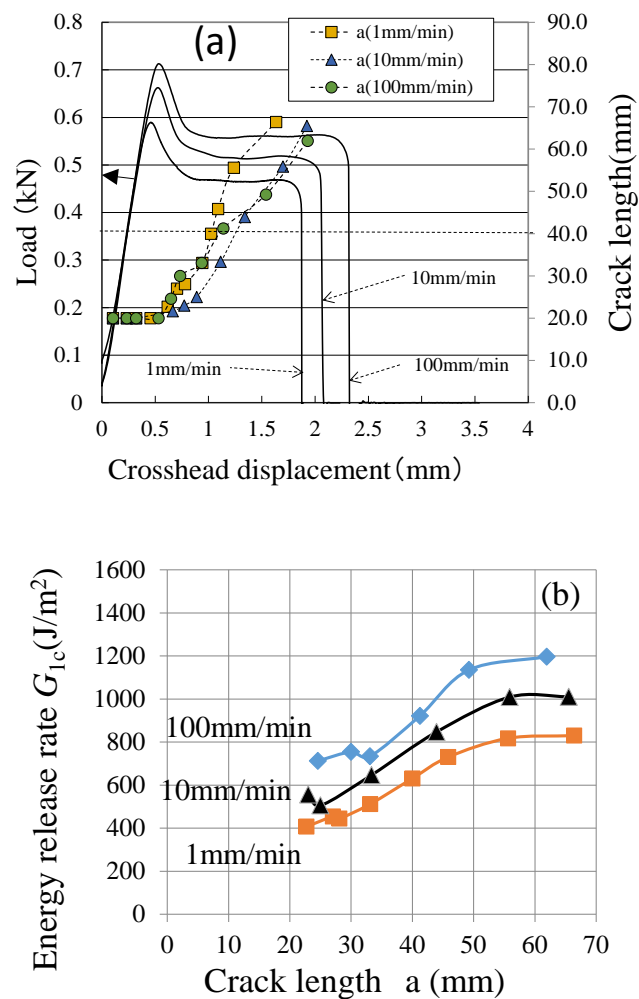


Fig. 4-9 (a) Load–displacement curves and crack length on TDCB test measurement.

(b) Relationship of Energy release rate and crack length on TDCB test measurement.

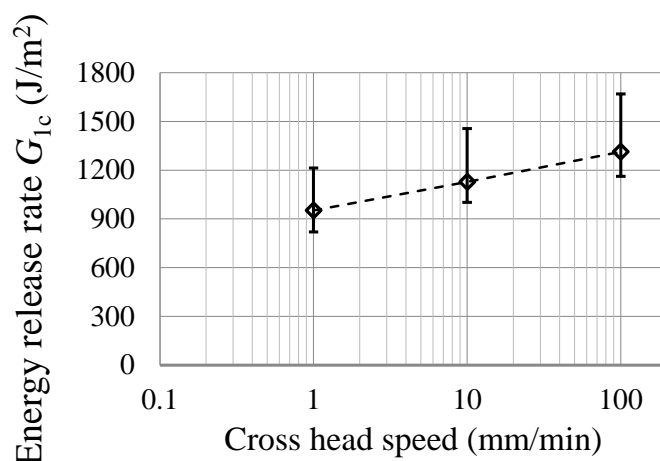


Fig. 4-10 Results of energy release rate G_{Ic} for each crosshead speed.

3.3 動的粘弾性試験の結果と周波数による差

23°Cにおける動的粘弾性の周波数依存性の試験結果を Fig. 4-11 に示す。周波数が高くなると、貯蔵弾性率は上昇し、 $\tan\delta$ が低下することがわかる。本報では曲げおよび TDCB 試験で試験速度を 1mm/min, 10mm/min, 100mm/min と変動させているので 10 倍, 100 倍の試験速度差がある場合の材料物性の差を考慮することが重要と考えた。Table1 に 1~10Hz の周波数を基準にして、それぞれ 10 分 1 の周波数, 100 分の 1 の周波の値に対して除した時の比率を記した。貯蔵弾性率は 4 点の平均で 10 分の 1 の時に、基準になる高い周波数の 0.79 になり、100 分の 1 の時には 0.59 になる。 $\tan\delta$ は 10 分の 1 の周波数では基準になる高い周波数の時の 1.25 となり、100 分の 1 の周波数では 1.61 となる(Table 4-1)。

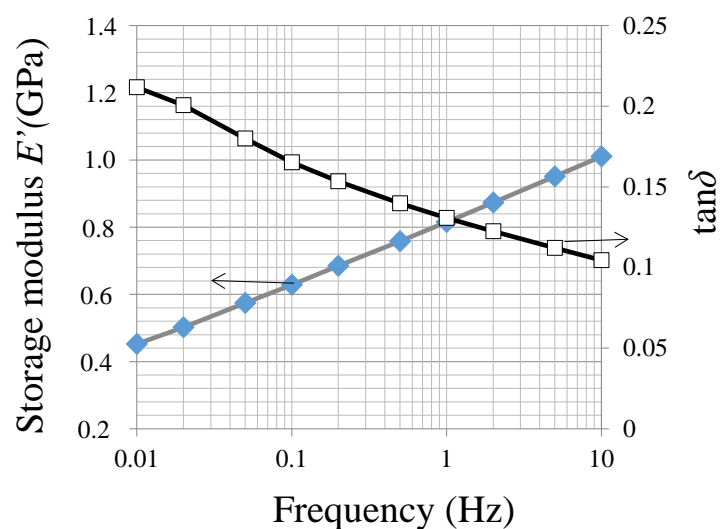


Fig. 4-11 Frequency dependence of DMA at 23°C.

Table 4-1 DMA results ratio values at reference region, 1/10 region and 1/100 region.

	Compared frequency (Hz/Hz)	Strage modulus Ratio		$\tan\delta$ Ratio	
		average		average	
Reference region	10/10	1	1	1	1
	5/5	1		1	
	2/2	1		1	
	1/1	1		1	
1/10 Region	1/10	0.81	0.79	1.25	1.25
	0.5/5	0.80		1.25	
	0.2/2	0.78		1.25	
	0.1/1	0.77		1.26	
1/100 Region	0.1/10	0.62	0.59	1.58	1.61
	0.05/5	0.60		1.60	
	0.02/2	0.57		1.64	
	0.01/1	0.55		1.62	

3.4 全面ストライプ状塗布サンプルにおけるアコースティックエミッションの発生状態

全面ストライプ状塗布サンプルにおける，曲げ試験における時間，試験荷重，AE の積算エネルギー，AE シグナルの強度(Amplitude)の関係を Fig. 4-12 に示す。試験速度 1mm/min の時は，荷重がかかり始めて 128 秒付近(変位 2.1mm)で積算エネルギーが急激に増し，その時の荷

重は 330N を示す(Fig. 4-12(a))。10mm/min の時は荷重がかかり始めて 17.1 秒(変位 2.9mm)あたりで積算エネルギーが急激に増え、荷重は 450N を示す(Fig. 4-12(b))。100mm/min の時は荷重がかかり始めて 2 秒後(変位 3.3mm)に積算エネルギーが急激に増え、その時に荷重は 540N を示した(Fig. 4-12(c))。Fig. 4-12(b)(d)(f)には、その時の AE シグナルの強度を示した。積算エネルギーの明確な増加が認められる時には 45dB 以上の AE シグナルが検出されている。

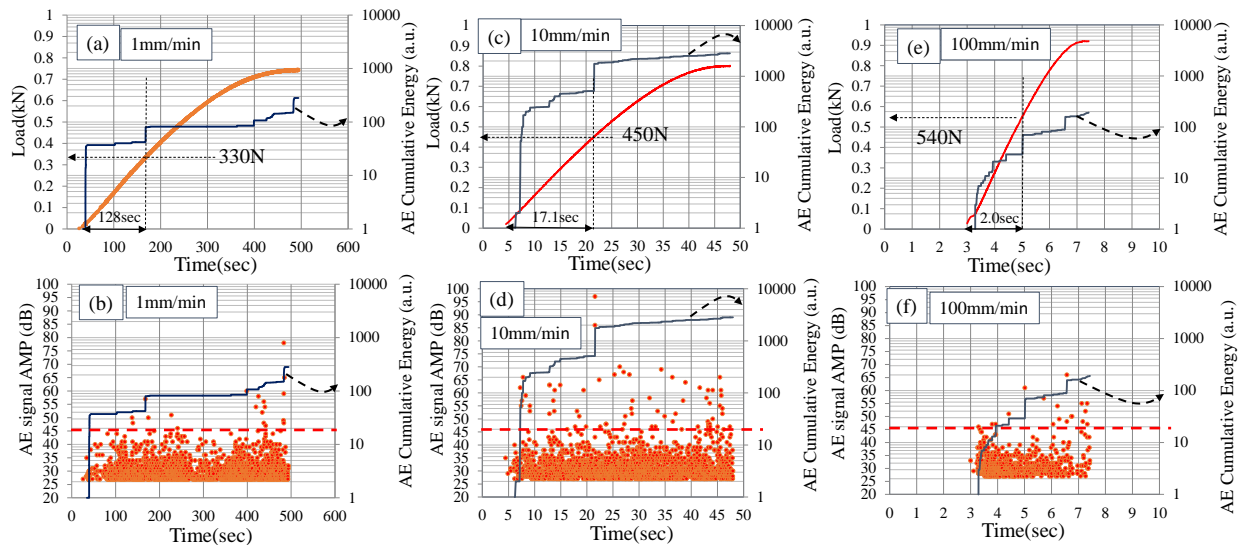


Fig. 4-12 Relationship of AE cumulative energy, Load and AE signal amplitude for the specimen with striped dispensing adhesive on all surface plate.

(a),(b): 1mm/min,

(c),(d):10mm/min,

(e),(f):100mm/min

3.5. 端部 25mm 接着サンプルにおけるアコースティックエミッションの発生状態

端部 25mm 接着サンプルにおける、曲げ試験における時間、試験荷重、AE の積算エネルギー、AE シグナルの強度の関係を Fig. 4-13 に示す。試験速度 1mm/min の時は、荷重がかかり始めて 276 秒付近(変位 4-6mm)で積算エネルギーが急激に増し、その時の荷重は 530N を示す(Fig. 4-13(a))。10mm/min の時は荷重がかかり始めて 32.9 秒(変位 5.5mm)あたりで積算エネルギーが急激に増え、荷重は 650N を示す(Fig. 4-13(c))。100mm/min の時は荷重がかかり始めて 2.7 秒後

(変位 4-5mm)に積算エネルギーが急激に増え、その時に荷重は 650N を示す(Fig. 4-13(e))。Fig. 4-13(b)(d)(f)の下側には、その時の AE シグナルの強度を示した。端部 25mm 接着サンプルにおいても積算エネルギーの明確な増加が認められる時には 45dB 以上の AE シグナルが検出されている。端部 25mm 接着サンプルでは AE 積算エネルギーが急激に増加する荷重は試験速度の増加に伴わなかった。

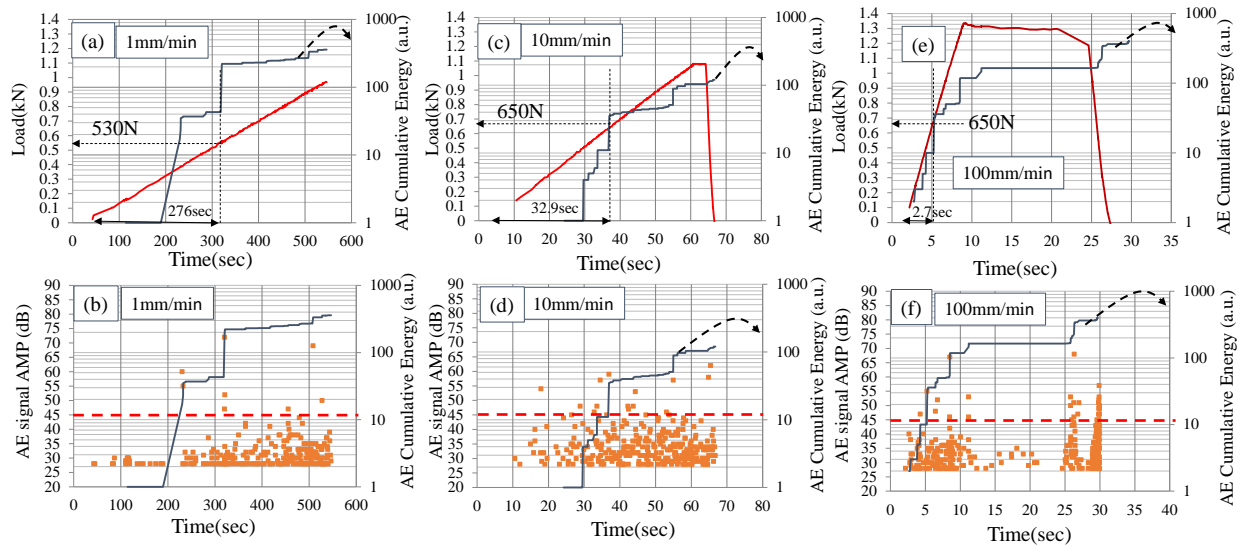


Fig. 4-13 Relationship of AE cumulative energy, Load and AE signal amplitude for the specimen with dispensing striped adhesive only 25mm from the edge of the plate.

(a), (b): 1mm/min,

(c), (d): 10mm/min,

(e), (f): 100mm/min

3.6 全面均一接着サンプルにおけるアコースティックエミッションの発生状態

全面均一塗布サンプルにおける、曲げ試験の時間、試験荷重、AE の積算エネルギー、AE 信号の強度の関係を Fig. 4-14 に示す。試験速度 1mm/min の時は、荷重がかかり始めて 265 秒付近(変位 4-3mm)で積算エネルギーが急激に増し、その時の荷重は 600N を示す(Fig. 4-14(a))。10mm/min では 37 秒付近(変位 5.4mm)で 780N を示す(Fig. 4-14(c))。100mm/min では 8.3 秒付近(変位 6.2mm)で 900N を示す(Fig. 4-14(e))。この試験サンプルにおいても試験速度依存性が認め

られる。100mm/min では僅かに認められるものの急激な AE シグナル積算エネルギーの増加が認められるまで、殆ど 45dB 以上のシグナルは認められない(Fig. 4-14(b)(d)(f))。

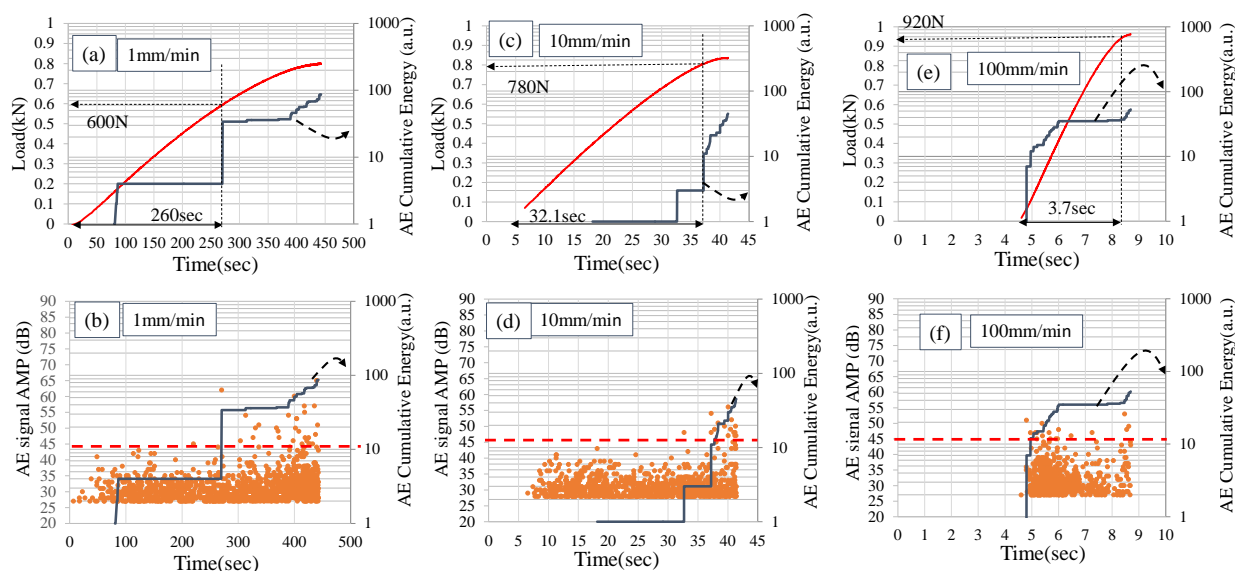


Fig. 4-14 Relationship of AE cumulative energy, Load and AE signal amplitude for the specimen with 225g/m² flatly dispensing on all surface plate.

(a), (b): 1mm/min,

(c), (d):10mm/min,

(e), (f):100mm/min

3.7 アコースティックエミッションを用いた AE 発生源の位置評定

サンドイッチパネルの 3 点曲げの結果について、POCKET AE 装置の AE 発生源の到達時間差から算出する位置同定機能より全面ストライプ状塗布サンプルに対して得られた結果を Fig. 4-15(a)に示す。2つのセンサーでの位置評定であり 72mm の幅があるため、1次元の直線として置き換えた換算位置としての情報になる(Fig. 4-15(b))。試験速度 1mm/min では、ほとんど中央部のみの AE が検出され、10mm/min では中央部以外の箇所もわずかに発生している。

100mm/min では、中央部で多く発生しているが、中央部以外も満遍なく発生している。AE 発生源を模式的に示したものを Fig. 4-15(c)に示す。なお、Fig. 4-15(a)内に点線で示している箇所

はクロスヘッドを停止した時間を記している。クロスヘッドを停止した後も AE は発生していることがわかる。

Fig. 4-16(a) に端部 25mm 接着サンプルの AE 発生源の位置評定結果を示す。この場合、試験中の試験機のクロスヘッドが移動している時には中央部付近しか AE 発生源を検出できなかった。

Fig. 4-16(b) には全面均一塗布サンプルにおける位置評定結果を記す。この試験片においても全面ストライプ状塗布サンプル (Fig. 4-15(a)) と同様に、試験速度が速くなるにつれて中央部から広く AE が検出されるようになり、100mm/min の試験速度では全体的に AE 発生源が検出された。

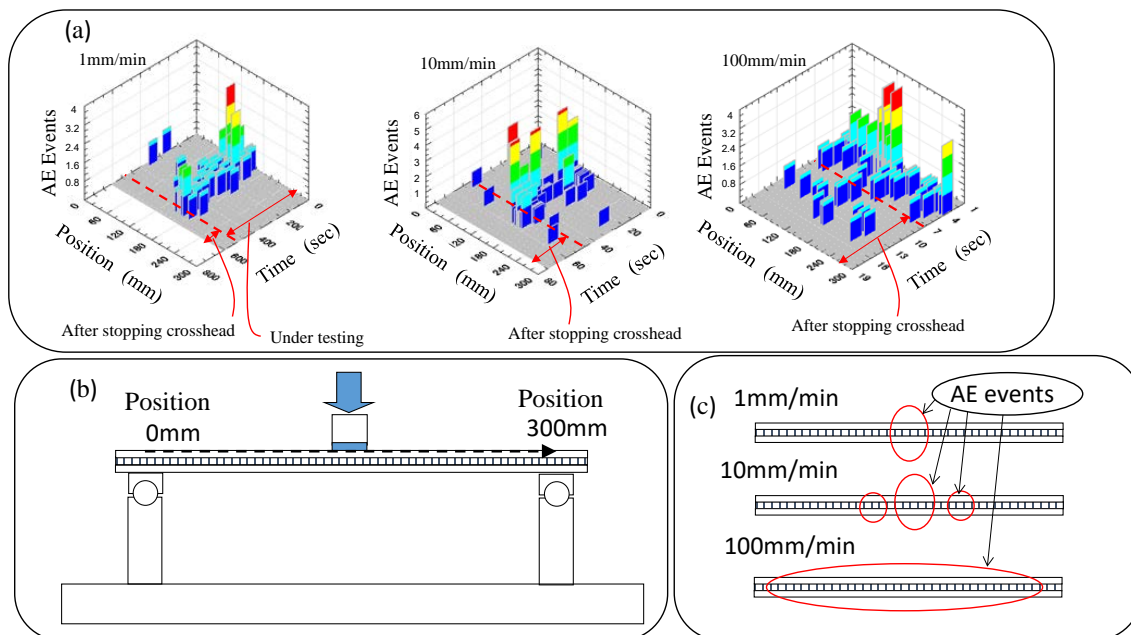


Fig. 4-15 (a) AE source location analysis on striped dispensing panel for each test speed.

Specimen: Striped dispensing adhesive on all surface plate

(b) Definition of AE source location

(c) Schematic illustration of detecting AE events area for each test speed

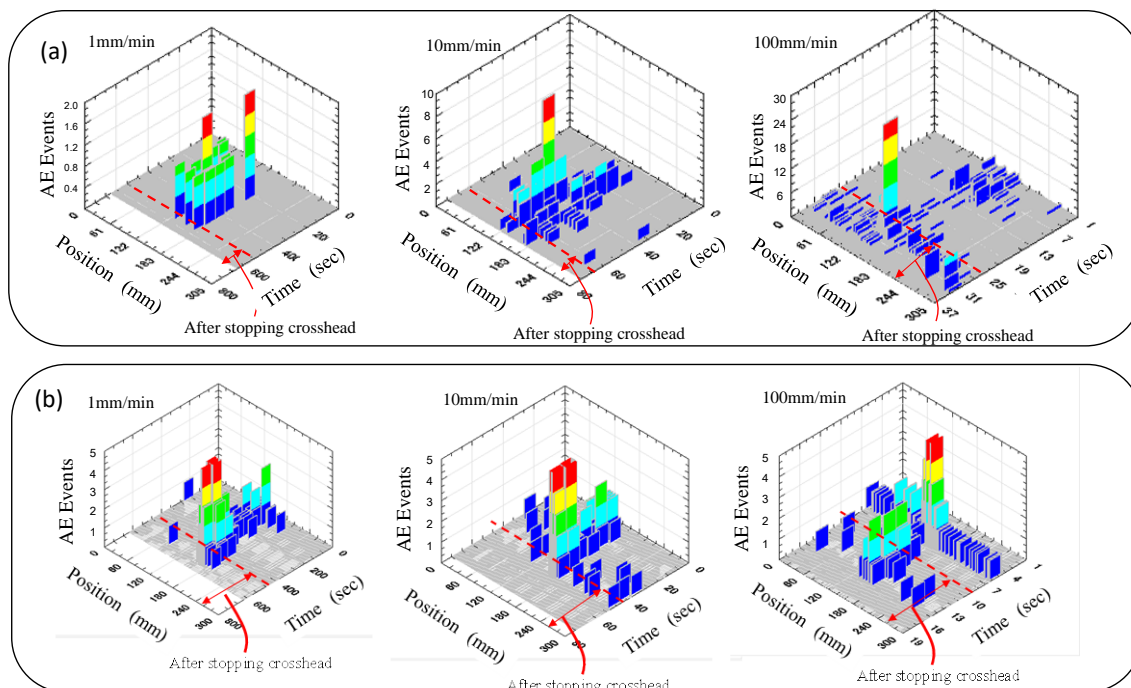


Fig.4-16 AE source location analysis on striped dispensing panel for each test speed.

(a) Dispensing striped adhesive only 25mm from the edge of the plate

(b) 225g/m² flatly dispensing on all surface plate

3.8 AE の発生と部材破壊に関する考察

25mm 端部接着サンプルから検出される AE シグナル強度は位置評定の結果から中央部付近の情報であるため基本的にアクリル接着剤の破壊を反映したシグナルではなく、アルミハニカムの局所的な座屈か表面板との摩擦によるものである。AE シグナル強度が 45dB 以上の値を示す時にはハニカムの局部座屈が起きている可能性が高い。

全面ストライプ状塗布サンプルでは平均で 83.8%の接着剤とハニカムコアの接触比率であり、16.2%は接着剤によって直接補強されない箇所が残存している。曲げ試験を行った場合、接着剤がなく直接補強がなされない部分が先に局部座屈を起こすものと考えられる (Fig.4-17)。荷重変位曲線の直線性が失われる荷重から求めた降伏値は 1mm/min, 10mm/min,

100mm/min でそれぞれ 410N,510N,570N である。AE の積算エネルギーが急激に増加する荷重が 330N, 450N, 510N であり全体的なハニカムパネルの機械物性の変化の予兆を捉えているといえる。AE エネルギーが急激に増加する荷重も試験速度にしたがって増加する傾向を示しており、接着剤の粘弾性の影響を反映していることは明らかである。25mm 端部接着サンプルでは 1mm/min, 10mm/min, 100mm/min と試験速度を変えても、積算 AE エネルギーが急激に増加する荷重は 530N, 650N, 650N となり、接着剤の物性の影響が殆どないことが示唆される。

全面均一塗布サンプルでは、大きな AE 積算エネルギーが確認されるまで 45dB 以上の AE シグナルがほとんど確認されない。この現象は、接着剤がハニカムを全面で補強し、局所の降伏を抑制していることを示唆すると考えられる。

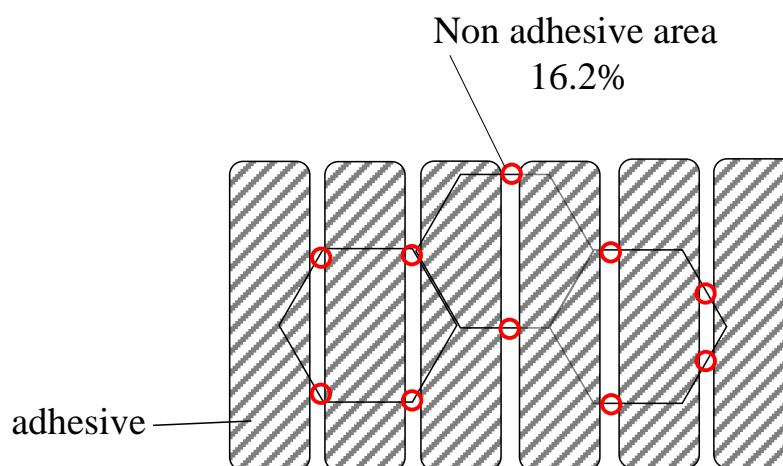


Fig.4-17 Schematic illustration of non-adhesive area on the honeycomb core.

3.9 粘弾性との関係に関する考察

Table 4-1 に示すように、周波数が最も早い領域にくらべ 10 分の 1, 100 分の 1 になった場合には貯蔵弾性率は低下し $\tan\delta$ が上昇する。試験速度が速い場合、接着剤は高い弾性率をしめすことになり、サンドイッチパネルとしてハニカムを支える補強効果も高くなる。

本検討で測定した各種物性について最も速い試験速度を基準にした時の比率を Table 4-2 に示す。Table 4-1 の粘弾性における貯蔵弾性率と周波数比率と最も近い関係にあるものは Table 4-2 における AE 波の積算エネルギーが急激に増加する荷重である。特にストライプ状に塗布した

時の比率は 100mm/min, 10mm/min, 1mm/min において 1.0, 0.83, 0.61 となる。これは粘弾性の貯蔵弾性率の比率が基準の周波数帯, 1/10 の周波数帯, 1/100 の周波数帯の比率 1.0, 0.79, 0.59 と最も近い。接着剤の欠損部近傍でハニカムコアの座屈が起これと考えられるが, 座屈が起これる近傍では接着剤の拘束による補強の影響がある。拘束による補強効果には弾性率が直結するため良い相関性を示したものと考えられる。

その他の各種試験における試験速度依存性についても接着剤の粘弾性の影響があることは明らかであるが, 接着剤の弾性限界や塑性破壊時のエネルギー, 破壊荷重など貯蔵弾性率以外の様々な要因の影響度が増すため, 貯蔵弾性率の比率との相関性が低くなると考えられる。この点を精査していくためには異なる試験を行い継続的な調査を進めていく必要がある。

一方, 試験速度が遅い場合は, 接着剤の観点では $\tan\delta$ が高い状態になる。周波数の比率差から, 10mm/min の場合は 100mm/min に対して 25% 高く, 1mm/min の場合は 100mm/min にたいして 61% 程度高くなる。ハニカムの座屈や接着剤の局所破壊は接着剤を伝達媒体と介し表面板に伝わり, AE シグナルの受信部に伝達していく。 $\tan\delta$ の値が高くなれば, 材料中に伝搬する弾性波などは接着剤層を通る時に振動や熱という形でその波のエネルギーが減衰すると考えられる。すなわち, 試験速度が 100mm/min の曲げ試験では, 広い範囲で AE シグナルを検出するが, それより遅い試験速度では中央部付近でしか検出しないという現象は, 弾性波の接着層における減衰という現象も一つの要因であるといえる。

Table 4-2 Relationship between crosshead speed and ratio value of test results

Honeycomb sandwich panel						TDCB
cross head speed (mm/min)	Maximum load	Stiffness	Yielding load	AE cumulative energy		Energy release rate G_{Ic}
				increasing sharply (striped dispensing)	increasing load (Flatly dispensing)	
100	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00	1.00
10	0.88	0.93	0.93	0.83	0.85	0.86
1	0.80	0.89	0.74	0.61	0.65	0.73

3.10 エネルギー解放率との関係性について

本報告では、TDCB の試験片を用い、亀裂が安定成長する領域でのエネルギー解放率を用いてその他の測定結果との現象との関連性を検討した。安定亀裂進展領域で得られる荷重領域については確実性の高い結果であるといえる。一方で、亀裂の初期亀裂が生じる領域の結果に対しては Blackman らの研究⁽¹⁰⁾に示されるようなクラックの進展に伴うエネルギー解放率の増加を示す R 曲線は得られていない。この点ではクラック検出方法の精度向上等、別途検討する余地がある。初期亀裂進展の部分の測定ではよりテーパーのない DCB 試験を用いるなど精度を上げた手法などが挙げられる。実際のハニカムパネルの曲げ試験ではモードIだけでなく、モードIIの影響も大きいことは明らかである。モードIIの検出については ENF 試験、およびモードIとモードIIの混合モードを視野に入れた評価を視野に入れることが重要である。破壊現象を正確に考察するために、精度の高いクラック検出、ひずみの分布、弾性領域と塑性領域の切りわけ、非線形の影響によるエネルギー解放率などを関連付けて総合的な評価を行うことが今後の課題である。

4. 結言

ハニカムサンドイッチパネルの破壊過程を確認し、接着剤の基礎物性との関連性を明確にするためにアコースティックエミッションを用いて 3 点曲げ試験の破壊過程を分析した。また、TDCB 試験、粘弾性の周波数依存性の関係を調査し、次のことがわかった。

- (1)ハニカムパネルの曲げにおいて 45dB 以上の大きなエネルギーの AE シグナルはハニカムコアの破壊を示すシグナルと考えられる。
- (2)全面に接着剤を均一塗布したパネルとストライプ状塗布パネル比較した所,全面に均一に塗布したパネルでは、積算 AE エネルギーが急激に増加する荷重がストライプ状塗布より大きな荷重で確認される傾向がある。これは未接着部分ではハニカムが補強されていない所が残るた

め、部分的な座屈が発生したためと考えられる。

(3)動的粘弾性の周波数依存性と各種の試験速度を依存性の結果の比率の相関を調査したところ、積算 AE エネルギーが急激に増加する荷重と貯蔵弾性率の周波数依存性が最も近い相関を示した。

(4)AE シグナルの検出位置は試験速度によって変わることが認められた。この現象は真の材料破壊と接着剤の $\tan\delta$ が大きいいため弾性波の減衰の影響が混在している。全容の解明には更なるデータの集積による究明が必要である。

(5)これらの調査結果よりハニカムサンドイッチパネルの設計評価方法として AE を併用した破壊箇所の同定は有効な手法である。これらの測定結果は、設計最適化や応力解析などを進めて行く上で有用な指針となる。

文献

1. 野口元, ”ハニカム構造の応用と機能”, シーエムシー出版, 42 (2008)
2. Kamiyama K., Haraga K. *Journal of the adhesion society of Japan* **47**, 220 (2011)
3. Kamiyama K., Ustumi S., *Journal of the adhesion society of Japan* **51**, 315 (2015)
4. Schechinger B., Vogel T., *Construction and Building Materials* **21**, 483 (2007)
5. Yun H., Choi W., Seo S., *NDT&E International* **43**, 615 (2010)
6. Quispitupa A., Shafiq B., Just F., Serrano D., *Composites Part B* **35**, 563 (2004)
7. Hua P., Han X., Silva L., Li W.D., *International Journal of Adhesion & Adhesives* **41**, 6 (2013)
8. Campilho R., Banea M., Neto J., Silva L., *International Journal of Adhesion & Adhesives* **44**, 48 (2013)
9. McElroy M., Leone F., Ratcliffe J., Czabaj M., Yuan F., *Composites Part A* **79**, 195 (2015)
10. Blackman B., Hadavinia H., Kinloch A., Paraschi M., Williams J., *Engineering Fracture Mechanics*, **70**, 233(2003)

第 5 章

SGA 接着剤におけるモードⅡ破壊エネルギー計測と
アコースティックエミッションでの破壊位置の照合

1.緒言

本章では評価対象をハニカムコアの接着から通常の板金などの面接着へ内容を推移させる。**SGA** は既に知られているように、各種電気製品から自動車用途など多岐に渡る使用がなされている。**SGA** が構造用に対しても優れた適用性があるからである。エポキシ系などに比べると多くはないものの、**SGA** の構造用途の研究に関する研究が活発になされている⁽¹⁻¹⁰⁾。

本章では材料評価の主題を接着部の破壊エネルギーの計測に置く。背景として、構造接着の研究事例では結合力モデル⁽¹¹⁾らで示されているように、**Cohesive Zone Model (CZM)** の利用による接着体の応力解析が活発になっていることに対応するためである。**CZM** 手法では接着の破壊エネルギーの視点が包含されている。しかしながら市場で入手できる接着剤の大半は、せん断強さや剥離強さなどはその技術仕様書に記載がされているが、接着剤の破壊エネルギーについては通常その記載はなく、自ら材料評価を通じて定量化していくことが必要である。せん断強度のようなパラメータと異なりエネルギー解放率は試験片形状に依存しない値であるため本質的な接着の剥離強さを追求する点で優れている。また、弾塑性解析に関するソフトウェアの発達に伴い **CZM** 手法に加え **Toughed Adhesive Polymer Model (TAPO モデル)** のようなモデルの提案も進んでおり⁽¹²⁾、接着設計の研究も多様化している。

SGA を用いた接着体の破壊エネルギー計測に関する研究も諸方面で活性化している。**CFRP** と **AL** の異種材接着における破壊エネルギーに関してや⁽¹³⁾、衝撃に対する破壊エネルギーの同定についても検討がなされており⁽¹⁴⁾、様々な角度からエネルギー算出に基いた接着体の評価がはじめられている。

CZM モデルを適用したアクリル系の **SGA** の構造接着に関しては、アルキルボラン系などでその研究が認められている^(3,9)。破壊靱性の計測に **AE** を活用した研究は、**CFRP** の評価研究において進んでおり、クラック長さと **AE** 発生源を比較する研究がなされている^(15,16,17)。構造接着用のエネルギー解放率の評価と **AE** 併用の評価についてはエポキシ系接着体で検討されている^(18,19)。特に **Droubi**⁽¹⁹⁾らは嫌気性のアクリル系接着剤での評価も進めている。**SGA** はエラストマ

一の分散等で、嫌気性接着剤とは設計思想が異なるもののアクリル系の接着剤も、国内外を問わず構造用に研究対象になってきている。

CZM モデルは汎用の応力解析のソフトウェアにも標準搭載される情勢となってきた。本論文で題材としている SGA 系接着剤は凝集破壊(Cohesive Failure)を示しやすいという利点を有している⁽²⁰⁾ため、実験の測定結果を CZM 等の数理解析に転用していく点で導入に向けた材料である。接着部のエネルギー解放率を特定してくためには、接着体のひずみ分布などの変形挙動、破壊挙動を正確に把握し、関連付けることが重要である。これらの実験的な研究活動は、CZM 手法をはじめとする数値解析を行う時の下地となる情報となる。

筆者らは、AE を破壊の過程を定量的に把握するために有効な手段と位置づけている。材料の破壊メカニズムを考察していく時に、多くの情報が得られるためである。また、材料自体のモルフォロジーを観察していくときにも、微視的な領域だけでなく損傷の点で、広大な領域の情報を取得できる。ミクロな領域の観察と、マクロな領域での破壊検出の組み合わせにより、より効率よく本質的な材料破壊のメカニズム解明に行き着くことが出来るものとする。実用的な面からも学術的な面このような位置づけでの研究開発が接着接合において重要性を増している。

2. 実験

2.1 試験片作製

接着剤は2液の SGA タイプのものをを用いた、前章でも使用していた DENKA 製の非 MMA 系の NS770 と DENKA 製の MMA 系の C355SL である。これらの接着剤の硬化条件は 23℃の環境下で 24 時間以上放置した後、60℃4 時間の追加加熱を行っている。接着面は 400 番の研磨紙で研磨した後、エタノールで脱脂したものをを用いた。接着厚みは、少量の直径 250 μ m のガラスビーズを添加して制御した。

2.2 シングルラップせん断試験片

せん断は、軟鋼 SS400 を用いて実施した。板厚みを 3.2mm，幅 25mm，ラップ長 12.5mm に設定した。出来る限り，せん断の軸が直線状の状態で行える様に，試験片チャック部には軟鋼 SS400 製タブを接着した。タブの形状は厚み 3.2mm で幅 25mm，長さ 25mm である。タブの接着には DENKA 製の 2 液アクリル C355-20 を使用した(Fig.5-1)。接着厚みは直径 250 μ m のガラスビーズを少量添加して制御した。試験片の側面には，強度測定の前に予め白黒の斑点模様をスプレー塗布した。この斑点模様をデジタルカメラで動画を撮影しデジタル画像関連のデータとする。

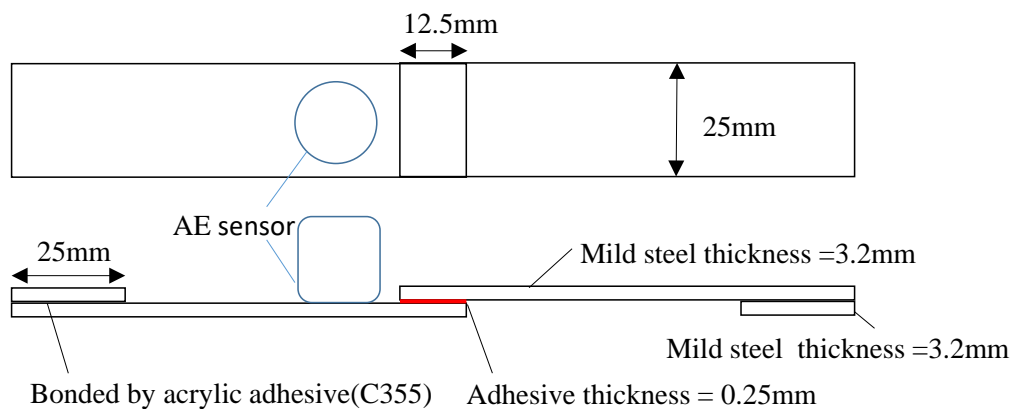


Fig. 5-1 Configuration of lap shear specimen.

2.3 破壊靱性試験（モードI：TDCB）

モードIの破壊靱性試験は傾斜（テーパ）付きのダブルカンチレバー（TDCB）試験で行う。被着体の材質はアルミニウム A5052-H34 と軟鋼 SS400 の 2 種類で実施した。予亀裂の位置にシリコーンで離形処理した 10 μ m のステンレス箔を使用した。試験片の厚みは 6mm で，長さ 153mm，断部から 30mm の位置から接着し接着糊しろは 123mm で接着の幅は 6mm となる。傾斜（テーパ）や試験機に取り付ける支点位置を含めた詳細情報は Fig. 5-2 に示す。TDCB 試験におけるコンプライアンスは汎用の有限要素法のソフトウェア ANSYS CAE（Cybernet Systems Co., Ltd.）製を用いて計算した。鉄のヤング率を 210GPa，アルミのヤング率を 70GPa，ポアソン

比は 0.3 で実施した。垂直方向の拘束は被着体の表面に与えた。この解析は、平面応力下でおこなった。クラック長さが 40mm から 90mm の範囲でコンプライアンス C の亀裂長さ a に対する比率 dC/da の値を算出した(Fig.5-3)。材質がアルミニウムの場合 4.52×10^{-5} 、材質が鉄の場合 1.51×10^{-5} が dC/da の値として算出された。 dC/da の値の導出は Blackman らの手法を参照した⁽²¹⁾。

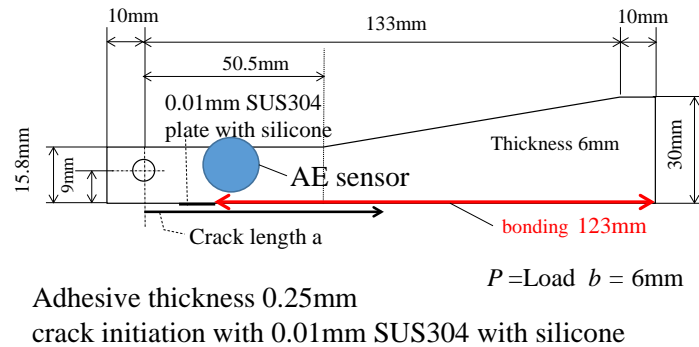


Fig. 5-2 Configuration of tapered double cantilever beam specimen.

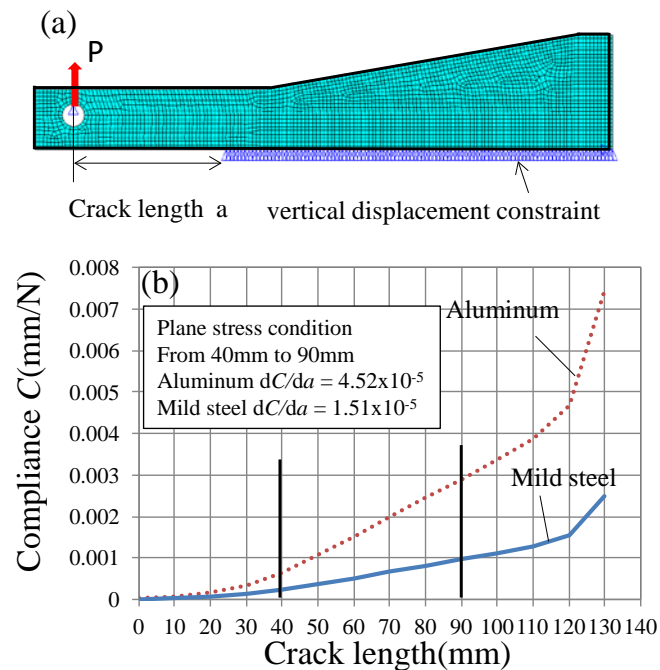


Fig. 5-3 (a) Analysis model and boundary condition for dC/da calculation.

(b) The stability of dC/da on a TDCB specimen calculated by elastic FEM analysis

モードIIの破壊靱性試験は3点 End Noctdhed flexure (ENF) 法によって行う。被着体は軟鋼SS400にて行う。軟鋼板の厚みは5mm、幅は25mm、長さは160mmである。長さ160mmのうち、端から115mmに予亀裂を設定する。予亀裂の位置には50μmのテトラフルオロエチレン(PTFE)製を亀裂発生の補助部材として挟み込んだ。支点間距離は120mmとする。詳細な図はFig.5-4に示した。試験方法についてはBudzikらの手法を参照した⁽²¹⁾。



接着体の ENF 試験を行う前に AE のシグナルの確認を行うために予備試験を行う。曲げ試験では、接着剤に由来する AE 以外にも鉄の試験片の曲げや試験治具との接触点などの AE が発生するため、接着剤の情報との切り分けをおこない易くするため、接着剤を使用しない状態での曲げ試験を行う。支点の位置、AE センサーの設置状態は ENF 試験と同じで、被着体である軟鋼を接着剤を用いず 2 枚重ねた状態のものを準備した。クロスヘッドの速度は 10mm/min で実施した。中央部を AE シグナルの 0mm の位置とした。詳細な図は Fig.5-5 に示す。

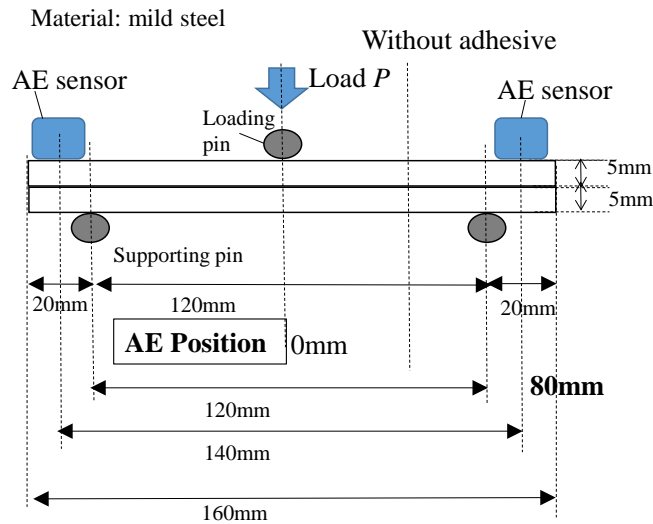


Fig. 5-5 Bending test set up for an AE detection without adhesive.

2.6 強度測定と AE の計測情報（せん断，TDCB）

せん断試験と TDCB 試験は島津製作所製の万能試験機 AG-1 で測定した。試験速度はせん断，TDCB 共に 1mm/min で実施した。せん断と TDCB における AE の計測については，Physical acoustics Ltd.の POCKETAE システムを使用した。測定周波数領域は 20kHz～1MHz に設定した。27dB をシグナルとノイズとを切り分ける閾値とする。使用した AE 受信部はアンプ内蔵型センサーであり，共振周波数 150KHz の PK 15I を用いた。表面板と受信部の弾性波伝達のカップラントはシリコングリースを用いた。

2.7 強度測定と AE の計測情報（ENF）

ENF 試験は Instron limited 製の MODEL5581 で測定を実施した。試験速度は 10mm/min で実施した。ENF での AE 測定については，位置評定を行う関係上 2つのセンサーを利用する。当所，ハニカムサンドイッチパネルの 3点曲げで使用したように Physical acoustics Ltd.の POCKETAE をの使用を検討した。しかしながらこのシステムでは位置評定の表示精度が ENF 試験での位置特定においては十分でなかったため測定システムを変更した。変更後に使用した

機材は Vallen system の AMSY-5 である。AE センサーは AE-150M を用いた。このセンサーは共振周波数が 150kHz にて中心になるように設定されている。また、プリアンプ内臓型センサーでないため、プリアンプでシグナルを 40dB に増幅させている。30dB をシグナルとノイズを切り分ける閾値とする。測定周波数領域は 95kHz～1MHz である。センサーとサンプル間の弾性波伝達のカップラントはシリコーングリースを用いた。

2.8 デジタル画像相関法 (DIC)

デジタル画像相関法については市販のデジタルカメラを使用して実施した。(SONY 製 DSC-TX30)。撮影時の画素は 1920×1080 である。例えば、測定時の視野を 115mm×65mm とすると、1つの画素は約 60 μ m 程度になる。この情報を画像解析に使用する。画像相関のソフトウェアは GOM 社製の ARAMIS にて行った。被着体の表面に白色の水性スプレーを行い、その後斑点状に黒色スプレーを塗布する。スプレーが乾燥した後試験片として使用した。本手法では2つのカメラを使えば3次元の解析が可能であるが、本研究では一つのカメラのみの撮影で、被着体の表面のみの2次元の情報となる。デジタル画像相関の接着剤などの評価は、宍戸らをはじめ広く活用されている⁽²³⁾。

2.9 動的粘弾性測定

動的粘弾性測定 (DMA) は接着剤を 20mm×10mm×1mm の形状に硬化したものを室温で 24 時間以上硬化させ、その後 60°C4 時間のアフターエージングを行ったものを用いた。試験装置は、Seiko Instruments Inc, 製の EXSTR6000 で実施した。DMA は引っ張りモードで測定した。毎分 2°C の昇温速度で加熱し、測定周波数は 0.2Hz から 20Hz の範囲で行った。

2.10 TEM 観察

これまでに評価してきた 2 種の SGA の接着剤はエラストマーで高度に変性されたアクリル接着

剤であることはわかっている。この変性成分であるエラストマーがどのように材料中に分布しているかを調べるために透過電子顕微鏡（TEM）による観察を行った。観察前に、硬化させた接着剤をウルトラマイクロトームで切断し、四酸化オスミウムで染色したサンプルに対して行った。オスミウムで染色される箇所は不飽和の二重結合を有すエラストマー由来の成分である。TEM の装置は日本電子製 JEM-2010F にて実施した。加速電圧は 200kV にして観察した。

2.11 接着剤中の微粒子観察

接着剤の中には有機溶剤などに溶解しない固体成分が入っていることが多い。本接着剤においても技術仕様の中でポリエチレン製の固体微粒子が入っていることがわかっている。どのような素性のものかを調べるために接着剤をアセトンに溶解し、ガラスプレートに滴下した。アセトンを乾燥させた後に、残渣物を光学顕微鏡で観察した。

3. 結果と考察

3.1 TDCB 試験

TDCB は式 (5-1) にしたがってエネルギー解放率 G_{Ic} を算出した。

$$G_{Ic} = \frac{P^2}{2b} \times \frac{dC}{da} \quad \text{Equation (5-1)}$$

G_{Ic} : Mode I energy release rate (J/m²)

P : Load (N)

a : Crack length (mm)

b : Width of adherend (6 mm)

C : Compliance (mm/N)

NS770 で接着したアルミニウムにおける、荷重－変位－AE 情報のグラフを Fig. 5-6 に示す。試

試験後の破断面は完全な凝集破壊を示した。エネルギー解放率 G_{Ic} は点線の四角で示した範囲で算出した所、 778J/m^2 であった。NS770 で接着した軟鋼における荷重－変位－AE 情報のグラフを Fig. 5-7 に示す。試験後の破断面は完全な凝集破壊を示した。エネルギー解放率 G_{Ic} は点線の四角で示した範囲で算出した所、 860J/m^2 であった。

C355SL で接着したアルミニウムにおける、荷重－変位－AE 情報のグラフを Fig. 5-8 に示す。試験後の破断面は完全な凝集破壊を示した。エネルギー解放率 G_{Ic} は点線の四角で示した範囲で算出した所、 1309J/m^2 であった。C355SL で接着した軟鋼における荷重－変位－AE 情報のグラフを Fig. 5-9 に示す。試験後破断面は完全な凝集破壊を示した。エネルギー解放率 G_{Ic} は点線の四角で示した範囲で算出した所、 1387J/m^2 であった。

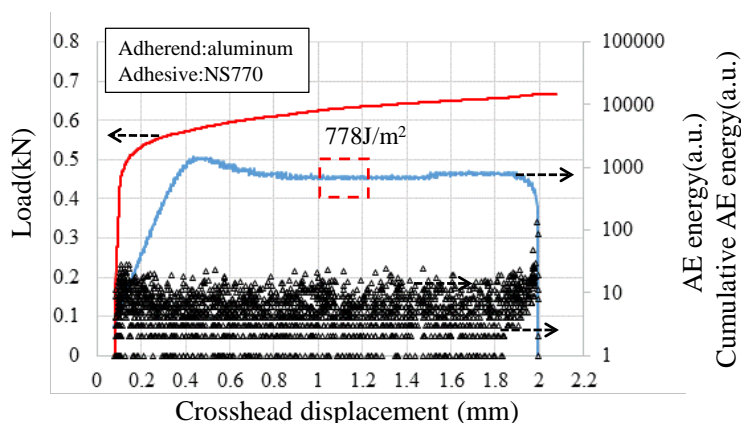


Fig. 5-6 Relationship of load - crosshead displacement - AE energy
on an aluminum TDCB joint bonded with NS770.

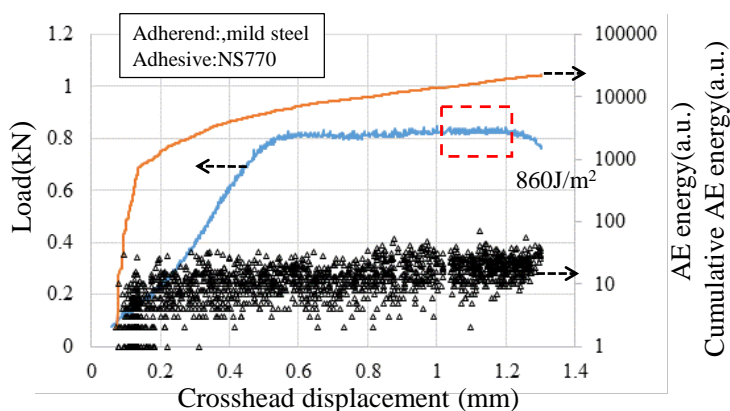


Fig. 5-7 Relationship of load-crosshead displacement- AE energy

on a mild steel TDCB joint bonded with NS770.

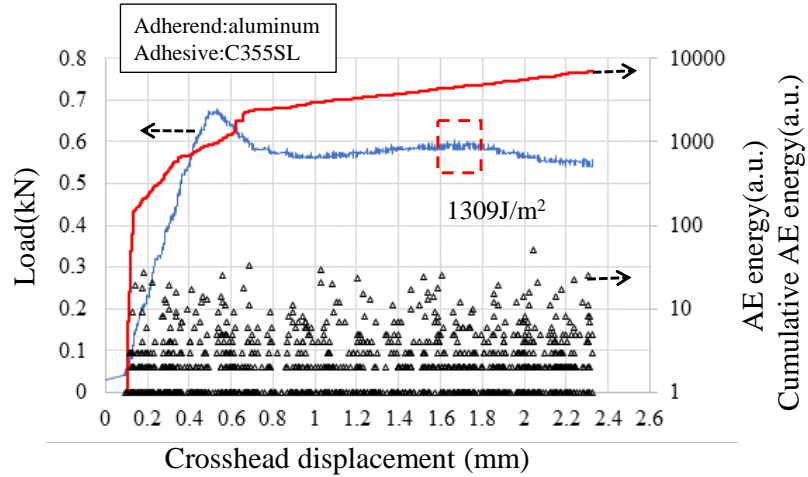


Fig. 5-8 Relationship of load-crosshead displacement- AE energy
on an aluminum TDCB joint bonded with C355SL.

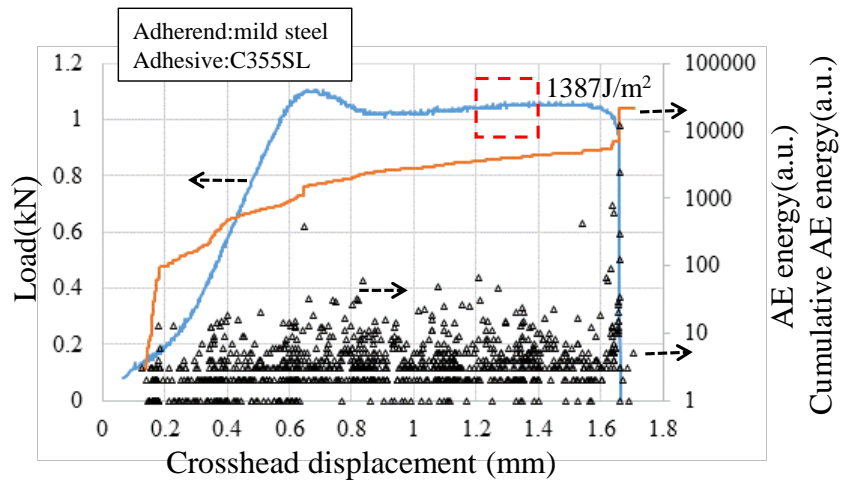


Fig. 5-9 Relationship of load-crosshead displacement- AE energy
on a mild steel TDCB joint bonded with C355SL.

3.2 TDCB 試験での AE シグナル

エネルギー解放率を算出したストローク範囲における，AE のエネルギーの分布状態の関係を

示したグラフを Fig.5-10, Fig. 5-11, Fig.5-12, Fig.5-13 に示す。アルミニウム接着体における AE のエネルギーは NS770, C355SL とともに主に 1~10 任意単位(a.u.)であった。NS770 のアルミニウム接着体においてエネルギーの値が 0 を除いた AE の平均エネルギーはストロークが 1.0~1.2mm の範囲では 5.97(a.u.), ストロークが 1.2~1.4mm の範囲で 6.05, ストロークがあ 1.4~1.8mm の範囲で 5.59 と大きく変動しない。安定した AE の発生状況が続いている。

C355SL アルミニウム接着体においてエネルギーの値が 0 を除いた AE の平均エネルギーはストロークが 1.2~1.4mm の範囲では 2.97(a.u.), ストロークが 1.2~1.4mm の範囲で 1.92(a.u.), ストロークが 1.6~1.8mm の範囲では 2.66(a.u.)と大きく変動しない。安定した AE の発生状況が続いている。TDCB 試験において C355SL 接着体での発生 AE エネルギーの大きさ自体は NS770 より明らかに小さい。

軟鋼接着体における AE のエネルギーは NS770 では主に 3~40 (a.u.)であった。NS770 軟鋼接着体において AE の平均エネルギーはストロークが 0.8~1.0mm の範囲では 17.77(a.u.), ストロークが 1.0~1.2mm の範囲で 19.17(a.u.)と大きく変動しない。安定した AE の発生状況が続いている。軟鋼接着体における AE のエネルギーは C355SL では主に 10 以下の任意単位(a.u.)であった。C355SL 軟鋼接着体において AE の平均エネルギーはストロークが 1.2~1.4mm の範囲では 4.97(a.u.), ストロークが 1.2~1.4mm の範囲で 5.78(a.u.)と大きく変動しない。安定した AE の発生状況が続いている。被着体のコンプライアンスの関係もあり、軟鋼では亀裂が安定成長している領域での荷重はアルミニウムの場合の荷重より大きい。 G_{Ic} 算出時の C355SL アルミニウム接着体で平均荷重が 589.5N で C355SL 軟鋼接着体で 1049.9N である。NS770 アルミニウム接着体は 454.4N で NS770 軟鋼接着体は 826.7N である。AE のエネルギーの大きさも荷重の大きさが直接顕在化している。

AE の累積エネルギーとその AE エネルギーを対数正規プロットで整理したものが Fig.5-14,5-15 である。C355SL の場合、被着体がアルミニウムでも軟鋼でも累積確率が 85%に到達した所で変極点が現れる。NS770 の場合、累積確率 93%のところでわずかな変極点が現れるものの殆

ど直線的にプロットされた。

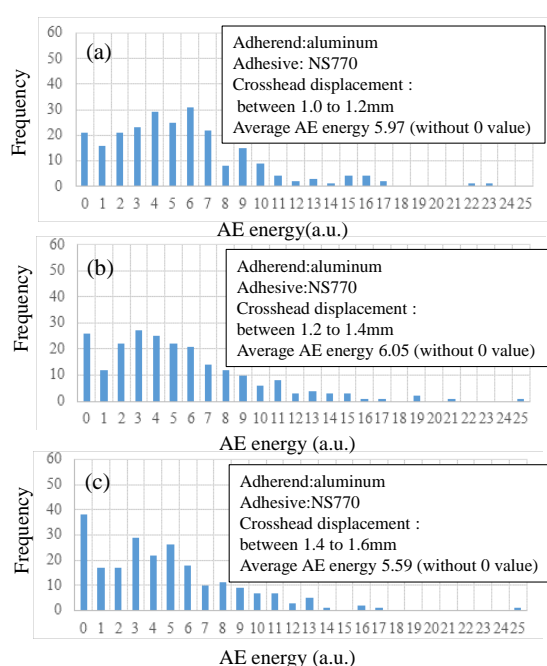


Fig. 5-10 AE energy distribution on an aluminum TDCB joint bonded with NS770.

(a) AE energy distribution in the area between 1.0mm to 1.2mm crosshead displacement.

(b) AE energy distribution in the area between 1.2mm to 1.4mm crosshead displacement.

(c) AE energy distribution in the area between 1.4mm to 1.6mm crosshead displacement.

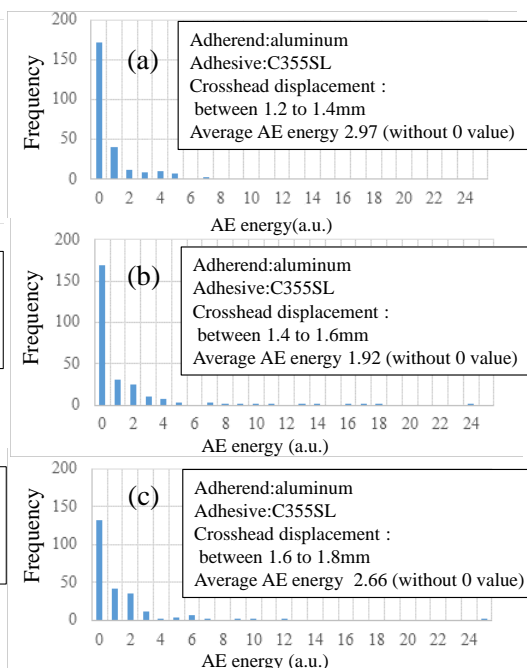


Fig. 5-11 AE energy distribution on an aluminum TDCB joint bonded with C355SL.

(a) AE energy distribution in the area between 1.2mm to 1.4mm crosshead displacement.

(b) AE energy distribution in the area between 1.4mm to 1.6mm crosshead displacement.

(c) AE energy distribution in the area between 1.6mm to 1.8mm crosshead displacement.

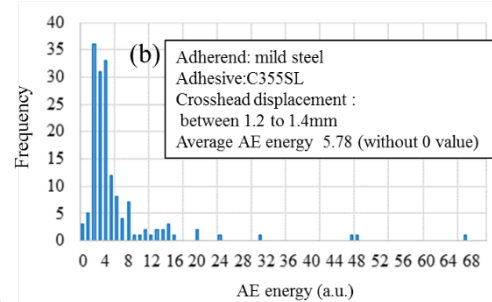
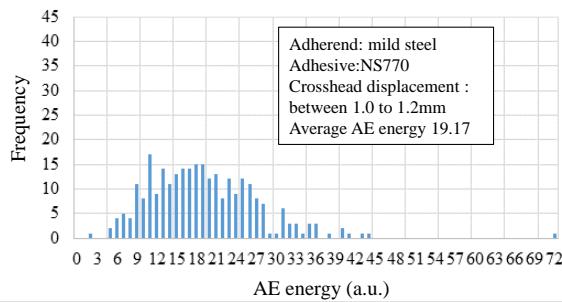
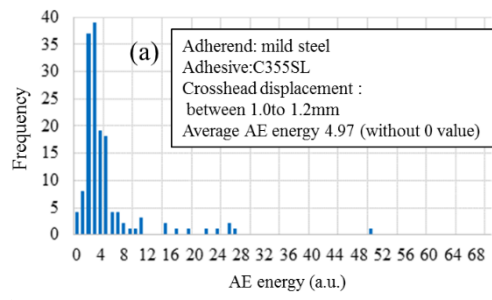
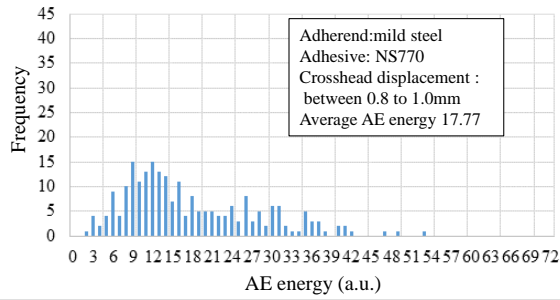


Fig. 5-12 AE energy distribution on a mild steel TDCB joint bonded with NS770.

(a) AE energy distribution in the area between 0.8mm to 1.0mm crosshead displacement.

(b) AE energy distribution in the area between 1.0mm to 1.2mm crosshead displacement.

Fig. 5-13 AE energy distribution on a mild steel TDCB joint bonded with C355SL. (a) AE energy distribution in the area between 1.0mm to 1.2mm crosshead displacement.

(b) AE energy distribution in the area between 1.2mm to 1.4mm crosshead displacement.

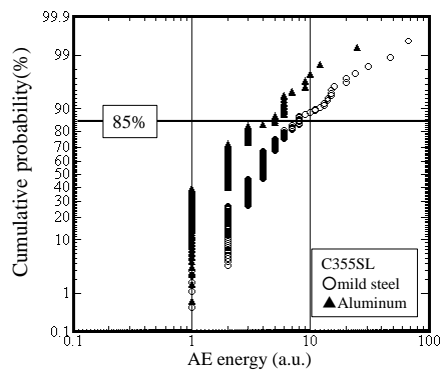


Fig. 5-14 Cumulative probability plot at a given AE energy level without the 0 value on a TDCB joint bonded with C355SL.

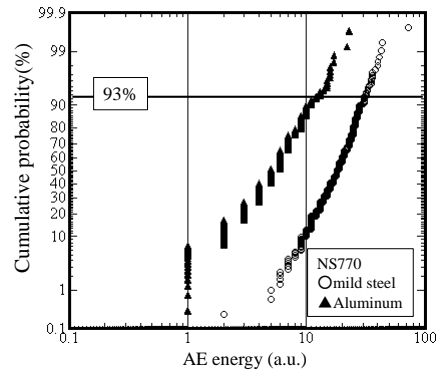


Fig. 5-15 Cumulative probability plot at a given AE energy level without the 0 value on a TDCB joint bonded with NS770.

3.3 シングルラップの引張りせん断

せん断の測定はそれぞれの接着剤で再現性を確認する意図で測定数は2とした。試験後の破

壊モードは C355SL, NS770 の両方の接着剤で完全な凝集破壊であった。

C355SL の軟鋼接着体の 1 つ目の測定では最大応力は 19.4MPa を示した。積算の AE エネルギーは破断の直前で 340(a.u.)を示した。破断後の AE エネルギーは 11,776(a.u.)を示した。C355SL の軟鋼接着体の 2 つ目の測定では最大応力は 20.2MPa を示した。積算の AE エネルギーは破断の直前で 1785(a.u.)を示した。破断後の AE エネルギーは 19,482(a.u.)を示した。C355SL のせん断試験では、せん断応力が最大応力を超えて、16MPa から 12MPa に減ずるときに、1 つ目の測定では 11,315 の AE エネルギー、2 つ目の測定では 17,306 の AE エネルギーを示した(Fig. 5-16)。NS770 の軟鋼接着体の 1 つ目の測定では最大応力は 11.2MPa であった。積算の AE エネルギーは破断の直前で 275(a.u.)を示した。破断後の AE エネルギーは 713(a.u.)を示した。NS770 の軟鋼接着体の 2 つ目の測定では最大応力は 11.1MPa を示した。積算の AE エネルギーは破断の直前で 141(a.u.)を示した。破断後の積算 AE エネルギーは 151(a.u.)を示した(Fig. 5-17)。

NS770 のせん断試験では 12MPa 以上の応力は検出されていない。10,000(a.u.)を越えるような AE 積算エネルギーのレベルは破断時の荷重の大きさに依存する。

せん断試験では、画像相関法 (DIC) を適用した。ひずみの分布は ARAMIS system を用いた。DIC で求めたひずみが真ひずみか公称ひずみか判断できなかったため、本論文では応力の分布やを観察するために、"DIC ひずみ"として扱う。ここで記す DIC ひずみは主ひずみである。破断時の臨界ひずみに相当する値は C355SL の場合 8%, NS770 の場合 7%の DIC ひずみであった Fig.(5-16(c), 5-17(c))。

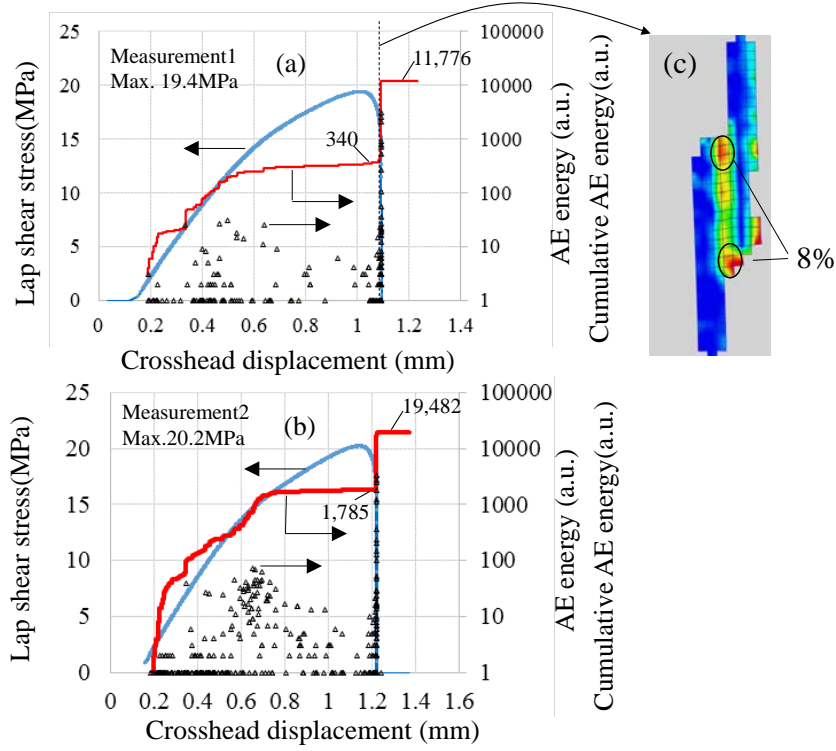


Fig. 5-16 (a), (b) Relationship of a stress-crosshead displacement- AE energy on a mild steel lap shear joint bonded with C355SL. (c) Strain distribution around adhesive layer from a digital image correlation.

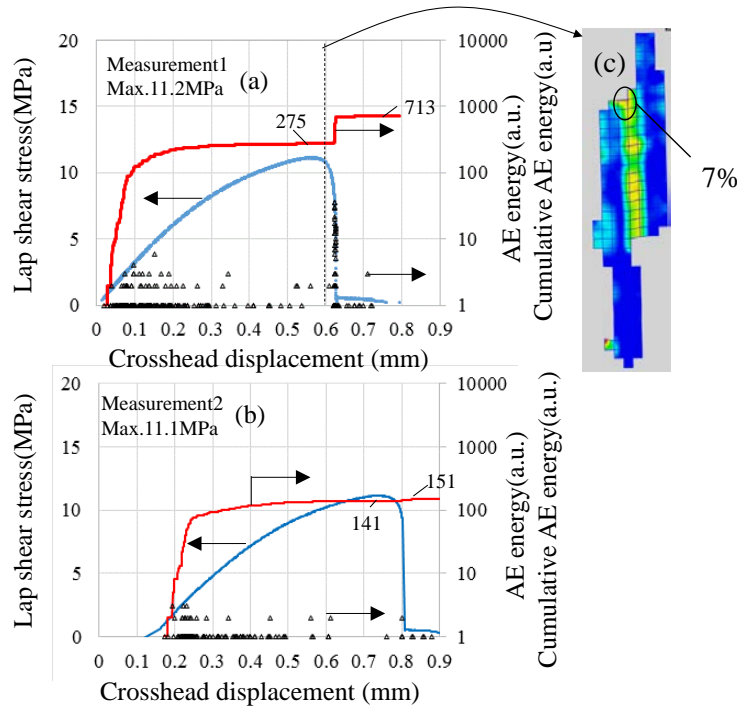


Fig. 5-17 (a),(b) Relationship of stress-crosshead displacement- AE energy on a mild steel lap shear joint bonded with NS770. (c) Strain distribution around adhesive layer from a digital image correlation.

3.4 ENF の予備試験（接着剤を用いない鉄での曲げ試験）

接着剤を用いず、2枚の鉄板を重ねたものの曲げ試験と AE を検出した結果を Fig. 5-18 に示す。AE amplitude においての大半は 50dB 以下が 2 枚の鉄の曲げ試験時の AE シグナルで、特に 60dB 以上では AE のシグナルは殆ど確認されない。本評価では最大荷重が 6800N であり、接着した ENF の試験体において、少なくとも 6800N 以下の荷重領域では 50dB 以上では鉄に由来する AE は少なく、特に 60dB 以上の AE シグナルでは殆ど鉄に由来するシグナルはなく、接着部に由来するものと判断する。また、AE シグナルの大きさは AE amplitude（単位 dB）で表記する場合もあれば、AE energy（単位 e.u. :energy unit）で表記する場合もあり、これらは基本的には相関がある。AE energy は AE のシステムを pocket AE を使用した場合単位は(a.u.)で示したが AE システムを AMSY-5 を使用したときには区別するため AE energy の単位は(e.u.)とする。

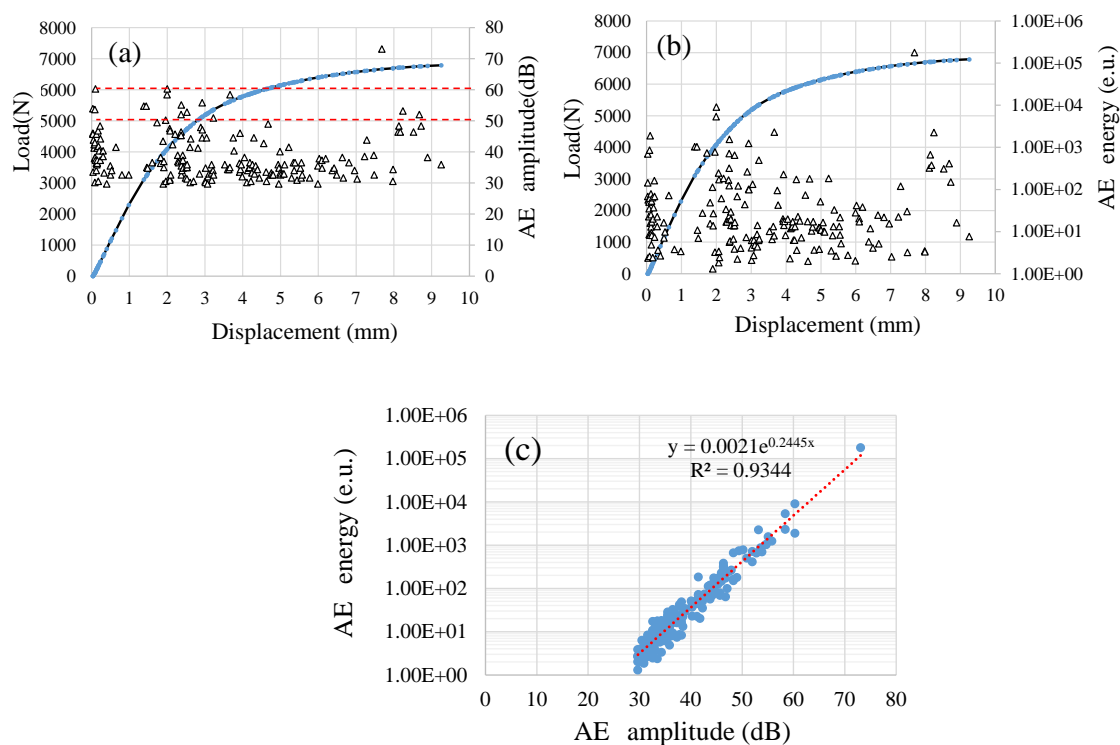


Fig. 5-18 Result of preliminary test for AE detection.

Measurement on two plate-layered Adherend material (Irons) without adhesive (a) Displacement-Load- AE amplitude (unit dB) diagram (b) Displacement- Load- AE amplitude (unit:e.u.) diagram (c) Relationship of AE amplitude and AE energy

3.5 ENF 試験

ENF 試験においても DIC による変位箇所のひずみ分布計測を行っている。DIC ひずみは主ひずみを算出した。Fig.5-19(a)に、接着剤が C355SL の場合の ENF の計測結果を示す。このグラフは、計測時間と、試験荷重、AE の発生位置、DIC で算出したひずみ長さをプロットしたものである。60dB 以上のシグナルは、測定時間 10 秒以内に AE 発生位置は 35mm 以下に集中している。クラックは 35mm の位置から 0mm の方向へ進んでいく。亀裂の進展等に関係のある AE シグナルは 35mm 以下の位置に生じるものである。DIC による主ひずみの分布は Fig.5-20 に示すように、測定時間に応じて広がっていることがわかる。本測定では、はじめに予亀裂部位からの亀裂発生を補足を試みたが明確な亀裂開始を同定することはできなかった。そこで代替の手法を用いることにする。シングルラップのせん断試験は、完全なモード II の試験とはいえないまでも面内せん断での破壊試験である。せん断試験では破断直前の DIC ひずみは 8%であり、この DIC ひずみ 8%を ENF におけるクラック発生時の臨界ひずみと見なすことにした。8%DIC ひずみが生じている位置を Fig.5-19(a)にプロットしているが、AE の発生位置とは照合しない。AE の発生位置は 2.4%の DIC ひずみの位置と照合する。接着剤が NS770 の場合は、測定時間 15 秒近傍で 6300N 付近でわずかにピークを示してその後は殆ど一定荷重である Fig.5-19(b)。C355SL に比べて大幅に AE の検出量は減っている。せん断試験での破断直前の DIC ひずみが 7%であったことから、7%の DIC ひずみを亀裂とみなしてその位置をプロットした所、こちらも AE 発生位置とは整合しなかった。

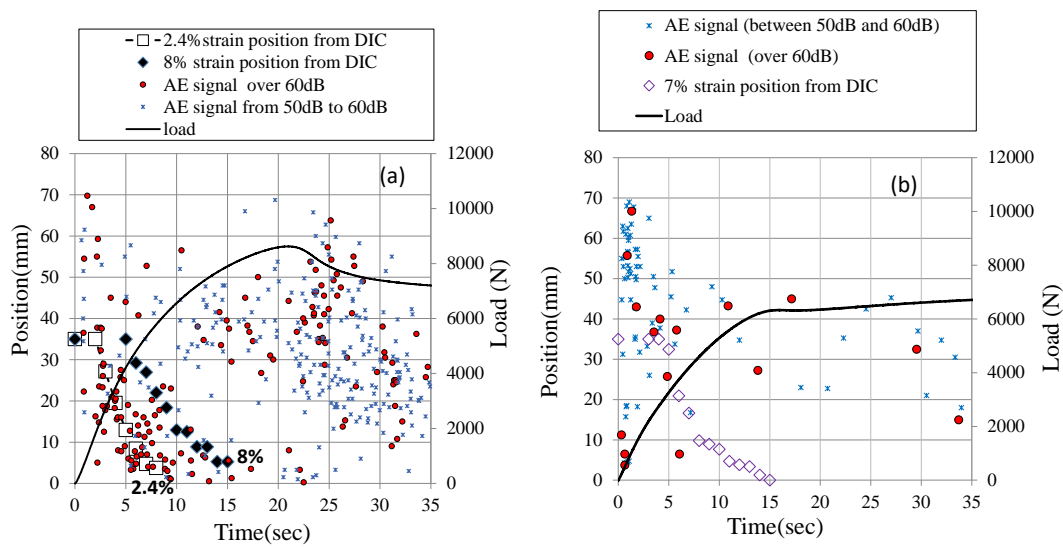


Fig. 5-19 Position-Load-time-AE signal diagram on an ENF test (Definition of Position: Fig. 5-4).

(a):Adhesive:C355SL.

(b): Adhesive: NS770

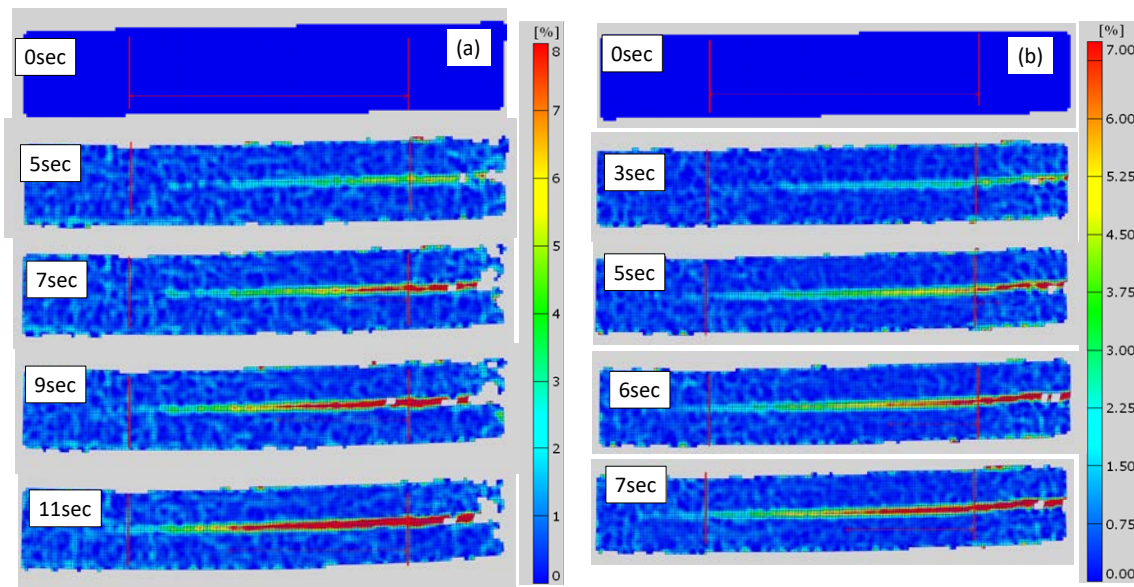


Fig. 5-20 Strain distribution from a digital image correlation on an ENF test

(Strain : Major strain) (a):Adhesive:C355SL. (b): Adhesive: NS770

これらの実験結果に対して C355SLは予亀裂を入れた端部に 8%の DIC ひずみが生じたときの

荷重，NS770 は予亀裂を入れた端部に 7% の DIC ひずみが生じたときの荷重を用いてモード II のエネルギー解放率を算出した。値は線形破壊力学に則った式(5-2)にて算出した⁽²²⁾。

$$G_{IIc} = \frac{9P^2 a^2}{16b^2 h^3 E} \quad \text{Equation (5-2)}$$

G_{IIc} : Mode II energy release rate (J/m²)

P: Load (N)

a : Crack length (Initial: 25 mm)

b : Width of adherend (25 mm)

h : Thickness of adherend (5 mm)

E : Elastic modulus of adherend (210 GPa)

このように設定して得られたエネルギー解放率 G_{IIc} は接着剤が C355SL の場合，449 J/m² であった(荷重：4577.5N)。NS770 のほうは 242 J/m² であった(荷重：3360.5N)。N 増しのために 2 測定目も実施し同様な計算を行ったところ，C355SL は 557 J/m² (荷重：5098.4N) NS770 は 192 J/m² (2993.3N) であった。前述の通り，C355SL は TDCB のモード I でのエネルギー G_{Ic} において 1309 J/m²，1387 J/m² が得られている。接着部のエネルギー解放率は一般的に G_{Ic} より G_{IIc} のほうが数倍大きい^(24, 25)。前章で，NS770 接着剤でと安定な亀裂領域の G_{Ic} と亀裂初期の G_{Ic} の比較で亀裂初期は安定領域の 50% 程度の G_{Ic} の値であった。 G_{IIc} と比較する基準を前述の 50% としたとしても単純な線形破壊力学の範疇では， G_{IIc} を過小評価している可能性が高く，精度を高めるため，別の考え方を導入する必要がある。

3.6 TEM 観察

各現象を考察していくために，TEM 像を観察した。接着剤 NS770 は，アクリルモノマーは主に 2-Phenoxyethyl acrylate で構成される。Nitrile butadiene rubber (NBR) と methacrylate

butadiene styrene (MBS)がエラストマー成分である。接着剤 C355SLはアクリルモノマーは主に Methyl methacrylate で構成される。本研究では四酸化オスミウム染色をされたサンプルについて TEM の観察を行っている。エラストマー変性されたアクリル接着剤では硬質のアクリルのハード相と柔らかいエラストマー相から構成される。TEM の観察ではエラストマー相は不飽和の二重結合がオスミウム染色で黒く着色される。アクリル相は不飽和の二重結合を含まないので白く観察される。

アクリルとエラストマーが混ざりあり様々な形態を取る。NS770 の TEM 画像では白いアクリル相の中に、黒い粒状の粒子が観察された。相構造の組み合わせでは、黒いエラストマー相は海で白いアクリル相は島である海島構造に対応している(Fig.5-21)。一方、C355SL では白いアクリル相の中に黒い粒状の粒子は確認されなかった(Fig.5-22)。また、C355 SL の TEM 像では、単純な海島構造とは言い難く、白いアクリル相も黒いエラストマー相も両方とも連続的な‘海’のような構造を示している。海島構造というより共連続構造という方が正確である^(26,27)。拡大した像で見ると(Fig.5-22(b)), 黒いエラストマーは粒子状であることがわかる。また、C355SL では白いアクリル相を繋ぐかのように灰色の相が存在している。この灰色の相は NS770 では観察されない。反応前の C355SL アクリルモノマーの主成分は分子量の小さい Methyl methacrylate であり、アクリル成分とエラストマー成分がよく混ざることが考えられる。灰色の相はアクリル相とエラストマー相がしっかり絡み合っている。

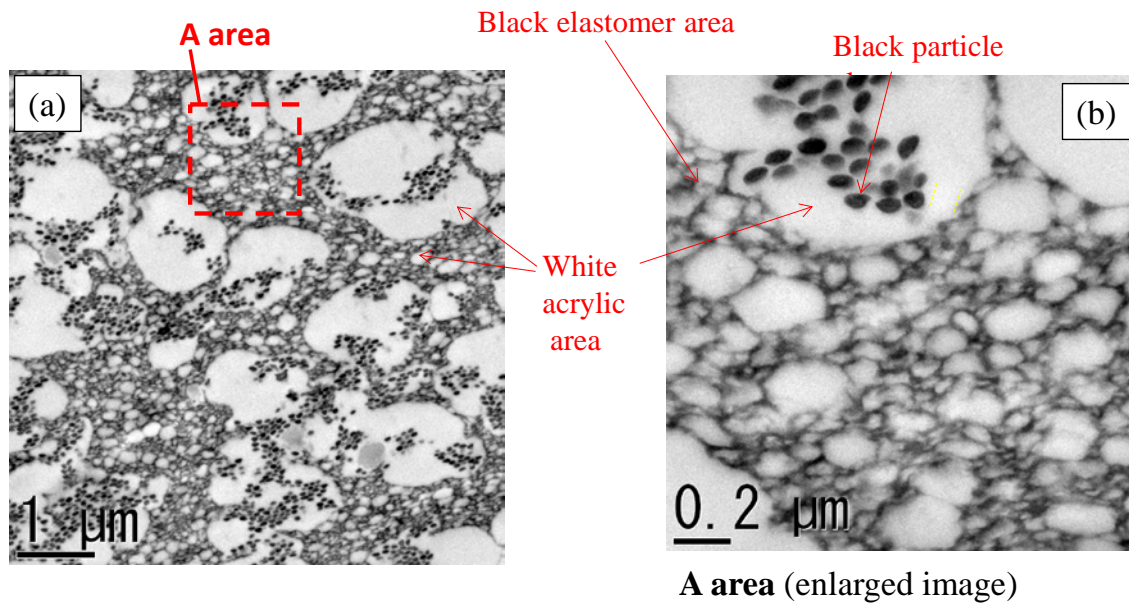


Fig. 5-21 TEM image of adhesive after osmium staining for double bonding

Adhesive material : NS770.

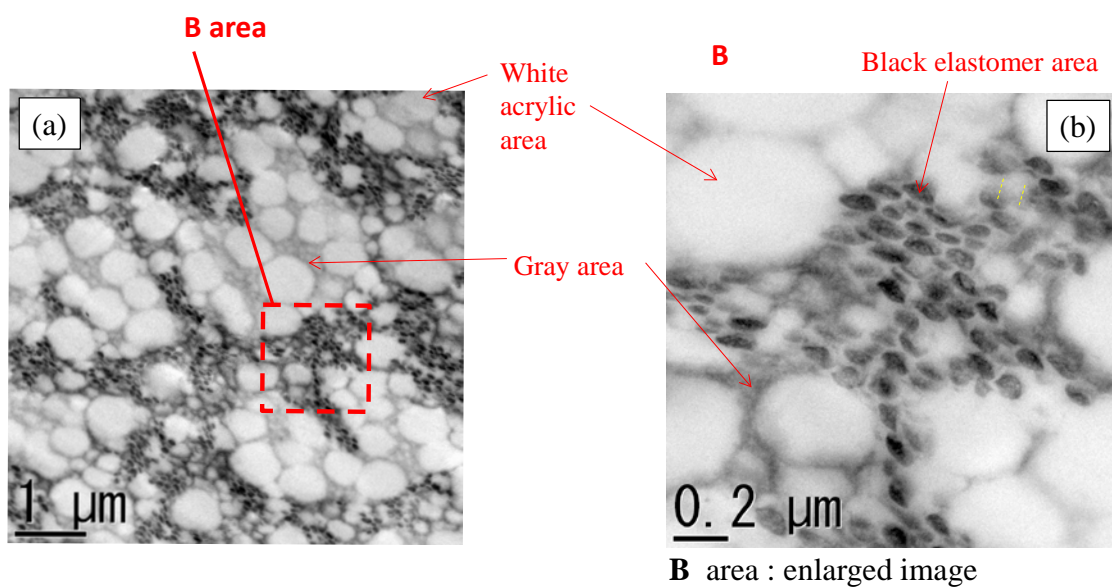


Fig. 5-22 TEM image of adhesive after osmium staining for double bonding

Adhesive material : C355SL.

3.7 動的粘弾性の結果

動的粘弾性(DMA)の結果を記す(Fig.5-23, Fig.5-24)。この測定では、1度の温度上昇で、複数の周波数で測定しており、測定した温度は1~2°C程度のずれが生じる。ここで常温と表記するが、これは22°Cから24°Cでの測定結果を抽出したものを示す。機械的な正接損失($\tan\delta$)は損失弾性率を貯蔵弾性率で除したものである。常温(22~24°C)領域では貯蔵弾性率と $\tan\delta$ はC355SLは測定周波数10Hzの時1.5GPaと0.08であり測定周波数1Hzの時1.27GPaと0.093である。NS770では測定周波数が10Hzの時は1.03GPaと0.136であり、1Hzの時は0.78GPaと0.181である。基本的にC355SLの方が弾性率が高い材料であることがわかる。

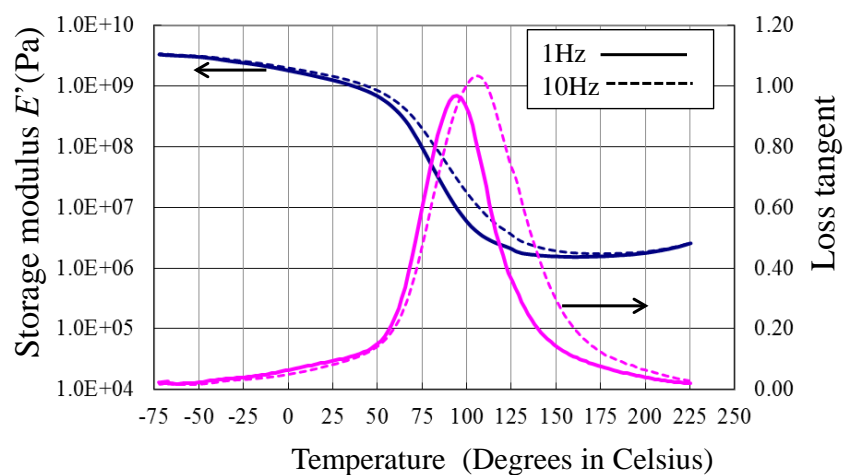


Fig. 5-23 Temperature dependence of storage modulus and mechanical loss tangent.

Adhesive material : C355SL

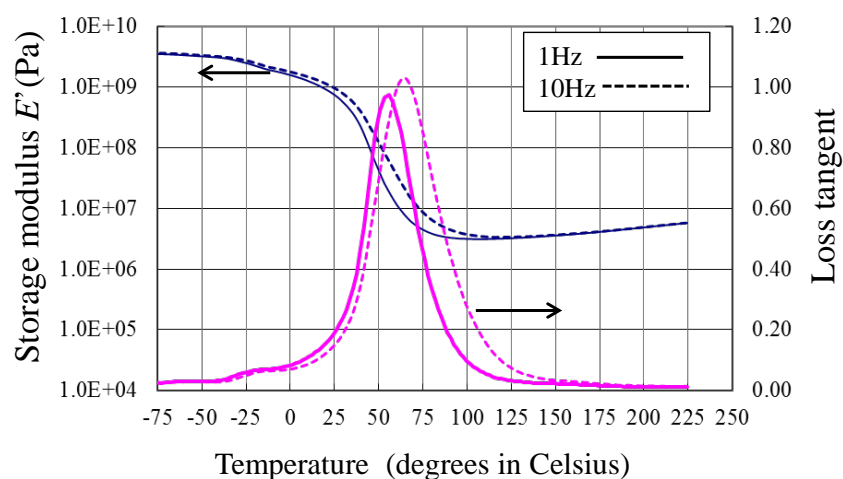


Fig. 5-24 Temperature dependence of storage modulus and mechanical loss tangent.

Adhesive material : NS770

3.8 接着剤中の微粒子の観察

NS770はアルミハニカムに使うことを前提にしているため、接着剤の中には微粒子は入っていない仕様である。アセトンで接着剤を溶解したものをガラスプレートの上に滴下してアセトン蒸発後に顕微鏡で観察したが、小さな気泡が散見されるだけで固体状のものは観察されなかった(Fig.5-25)。C355SLは接着剤層を確保するためにポリエチレン微粒子が入っている。これらはガラスプレートの上にアセトンを滴下してアセトン蒸発後の残渣の観察でも確認された(Fig.5-26)。21個の微粒子の長径分を画像上で測定してみたところその平均値は0.101mmであった。ガラスプレートにおける微粒子の占有面積は3.5%であった。概ねこの程度の添加量であることが推定される。

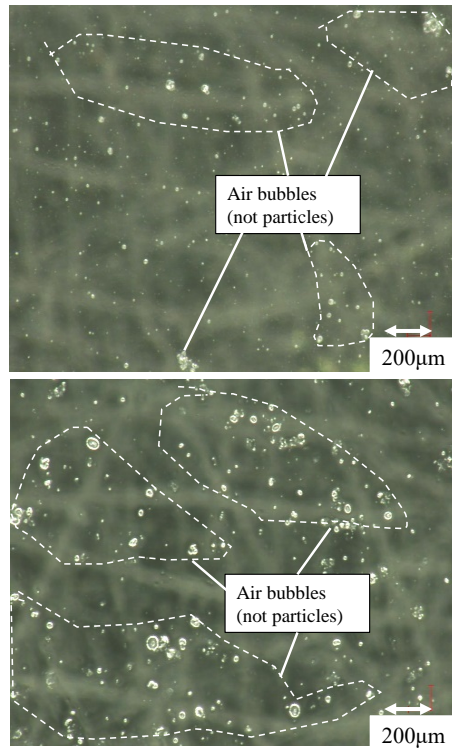


Fig. 5-25 Optical microscope images of the residue on the glass plate after (1) and (2).

(1)Diluting NS770 adhesive material before curing with acetone.

(2)Dropping the diluted NS770 material on the glass plate and evaporating acetone.

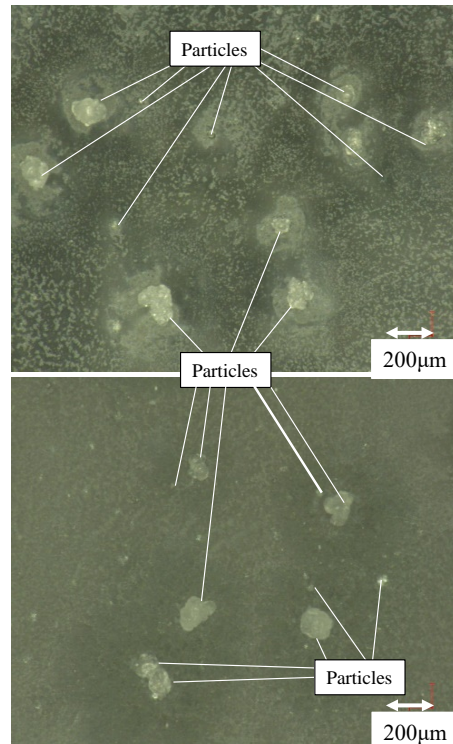


Fig. 5-26 Optical microscope images of the residue on the glass plate after (1) and (2).

(1) Diluting C355SL adhesive material before curing with acetone.

(2) Dropping the diluted C355SL material on the glass plate and evaporating acetone.

3.9 各実験結果を統合した考察

せん断試験にて、試験で蓄えられるエネルギーの比較について考える。Fig. 5-27, 5-28 にせん断試験時の荷重－変位曲線を示す。この荷重変位曲線と X 軸の線で囲まれる面積を計算した。この面積はエネルギーに相当すると考えられる。NS770 のせん断ではその面積は 4.65 と 4.97 でありその平均値は 4.85 である。C355SL では 12.15 と 14.51 であり、その平均値は 13.33 である。これらを比較すると、NS770 は C355SL の 36.1% の値となる。

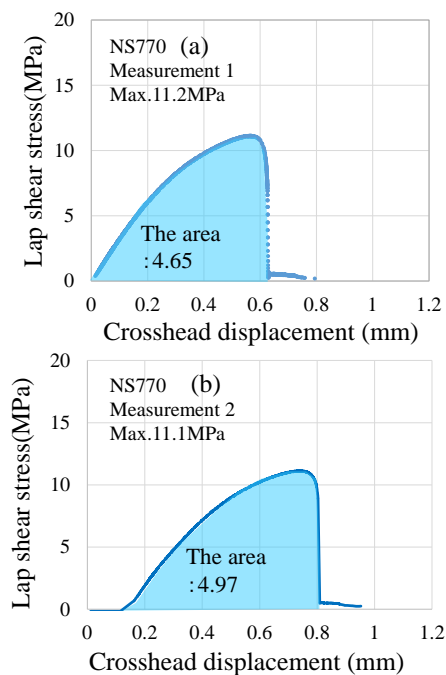


Fig. 5-27 The area formed by the stress-displacement curb and x-axis base line.
Adhesive material: NS770

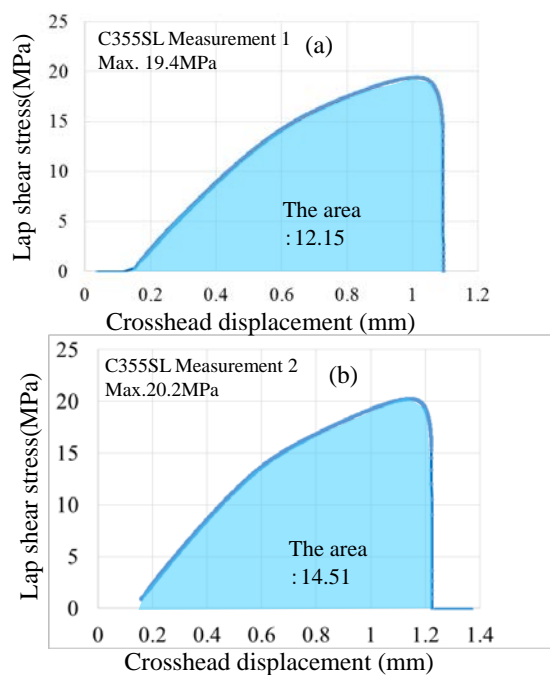


Fig. 5-28 The area formed by the stress-displacement curb and x-axis base line.
Adhesive material: C355SL

Table 5-1

Summary of measurement results obtained in section 5

1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
adhesive material	adherend material	Lap shear maximum stress (n=2 ave.)	Rupture limit strain to cross head direction on a lap shear test estimated from DIC	Cumulative AE energy before a rupture on a lap shear test	G_{Ic} from TDCB specimen	G_{IIc} from ENF specimen (n=2 ave.)	Storage modulus at 23 degrees Celsius (measurement in 1Hz / 10Hz)	Loss tangent value at 23 degrees Celsius (measurement in 1Hz / 10Hz)	The size of area formed by the stress-displacement curb and x-axis base line on lap shear test diagram (Fig.26 and 27) (n=2 ave.)
	(mm)	(MPa)		(a.u.)	(J/m ²)	(J/m ²)	(GPa)		
C355SL	mild steel	19.8	0.08	340, 1785	1387	503.0	1.27 / 1.50	0.093 / 0.080	13.33
	aluminum	-	-	-	1309	-	-	-	-
NS770	mild steel	11.15	0.07	275, 141	860	217.0	0.78 / 1.03	0.181 / 0.136	4.81
	aluminum	-	-	-	778	-	-	-	-

5章での実験結果のまとめを Table 5-1 に示す。ENF から求めた G_{IIc} の値を TDCB から求めた G_{Ic} の値と比較すると G_{IIc} は G_{Ic} より小さい値を示した (Table 5-1, 6, 7 列)。これは、 G_{IIc} の値について精度をあげていく必要があることを示唆している。しかしながら、NS770 の G_{IIc} の値 (217 J/m²) は C355SL の値 (503 J/m²) の 43.1% であった。せん断と ENF はモード II に属する試験である。NS770 のモード II 試験での破壊エネルギーは C355SL の約 40% レベルの水準である。C355SL は NS770 より高い貯蔵弾性率を有する (Table 5-1, 8 列)。C355SL はモード II 試験

において破断にいたる臨界ひずみは 8%で NS770 (7%)よりわずかに大きい(Table5-1, 4 列)。通常、接着体の試験では、弾性率に破断までのひずみを掛け合わせた値が蓄えられるエネルギーに対応すると考えられる。C355SL は弾性率も破断までのひずみも両方とも NS770 より大きな値を有する。

TEM の観察より、NS770 ではエラストマー相とアクリル相の海島構造が確認され、C355SL ではエラストマー相とアクリル相の共連続構造が確認された。オスミウム染色による黒色部分の比率から、エラストマーの添加比率は、NS770 のほうが C355SL より多いと考えられる。エラストマーの比率が多いと AE のセンサーに届く前に、AE の弾性波の減衰にも繋がる。一方の C355SL は硬質なアクリル相が連続的な状態で存在する分、AE 弾性波の伝達が NS770 より起こりやすいと考えられる。しかしながらモード I の TDCB では、エラストマーが多くエネルギー解放率自体は小さい NS770 が C355SL より大きな AE を検出している。この現象については TEM 画像だけでは説明が困難であり、破壊面の断面観察を合わせて次章で再度考察する。AE 発生の 2 次的な要因としては、ポリエチレンの微粒子の存在の違いに焦点を当てる事が出来る。C355SL はポリエチレン微粒子を含んでいるが、NS770 では含んでいない。ENF 試験で負荷される荷重は TDCB 試験より大きい値であり、AE シグナルはポリエチレンの微粒子や、接着剤とポリエチレンの界面に由来するものも含んでいる可能性がある。

線形破壊力学に基いて算出した G_{IIc} の値は G_{Ic} より小さい値となった。 G_{Ic} は荷重の安定なプラトー領域での測定結果で妥当性もあり、 G_{IIc} の値を過小評価していると考えられる。 G_{IIc} の臨界点については単純な亀裂長さという考え方を一歩進展させて、非線形な現象を取り込んで再計算する必要がある。具体的には予亀裂からの非連続な微小亀裂の現象に着目し、次章でさらに研究内容を深化させていく。

4. 結言

Cohesive Zone Model などの数理モデルへ材料評価結果を適切に適用するために 2 液室温硬化

型の SGA 接着剤のせん断強さの評価および、破壊エネルギーについて評価を行った。AE 検出、デジタル画像相関を併用して破壊の過程について詳細な調査を行った。また、動的粘弾性、TEM 観察の結果を合わせて総合的な評価を実施した。 G_{Ic} は精度良く算出できた。モード II の試験では、クラックの開始判定の手法としてデジタル画像相関によるひずみの分布をせん断試験の破断直前のひずみの値を用い、ENF 試験実施時の亀裂発生 of 臨界点を定めた。ENF 試験とせん断試験では非 MMA 系の NS770 接着剤はモード I の TDCB では AE の検出は大量になされたが、せん断やモード II の ENF 試験では AE の検出はわずかであった。MMA 系の接着剤 C355SL では AE の検出はモード I でも良くなされ、せん断やモード II の ENF 試験でも十分になされた。AE シグナルの位置評定により、接着剤 C355SL では AE シグナルは、実亀裂に相当するひずみに到達する前の段階で発生していることがわかった。今回評価した 2 つの接着剤で線形破壊力学を基にした ENF 試験から算出した G_{IIc} は G_{Ic} より小さい値となり過小評価していることが示唆された。TEM 観察によりエラストマー相とアクリル相が海島構造や、共連続構造が認められ TDCB 試験での AE のエネルギー差に繋がっていると推定された。次章では、部材の破壊の観察、有効クラック長さの概念などを含めた評価内容について議論を行う。

文献

1. Pereira A, Morais A., *International Journal of Adhesion & Adhesives* **23**, 315 (2003)
2. Pinto A, Magalhas A, Silva F, Baptista A., *International Journal of Adhesion & Adhesives* **28**, 452 - 456 (2008)
3. Avendaño R, Carbas C, Marques E, Silva L, Fernandes A., *Composite Structures* **152**, 34 (2016)
4. Takiguchi M., Izumi J., Yoshida S., *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series A* **68**, 126 (2002)
5. Taguchi K., Nemoto H., Kihara K., Isono H., Sugibayashi Y., *Journal of Japan Institute of Light Metals*; **57**, 6 (2007)
- 6 Kihara K., Ishi K., Takahashi T., Isono H., Sugibayashi T., *Journal of the adhesion society of Japan* **49**, 11 (2011)
7. Kihara K., Yoshida S., Ueno M., Sugibayashi T., *Journal of the adhesion society of Japan* **50**, 107 (2014)
8. Haraga K., Taguchi K., Yoda K., Nakashima Y., *International Journal of Adhesion & Adhesives* **23**, 376 (2003)
9. Kim H., Naito K., Oguma H., *International Journal of Adhesion & Adhesives* **82**, 173 (2018)
10. Liu X., Imanaka M., Kimoto M., *JCCM6 proceeding* 3D-01 (2015)
11. Yoshimura.A., *Journal of the adhesion society of Japan* **50**, 179 (2014)
12. Abe N., Sekiguchi Y., Sato C., *Journal of the adhesion society of Japan* **54**, 366 (2018)
13. Hara K., Imanaka M., Kouno Y., Ikeda T., *JCCM8 proceeding*, 3D-10 (2017)
14. Hayashi A., Sekiguchi Y., Sato C., *WCARP6 extended abstract*, (2018)
15. Lenka M., Martin K., *Procedia Engineering* **114**, 86 (2015)
16. Milad S., Mohamad F., Mehdi A. N., Hossein H. T. *Composite Structures* **124**, 120 (2015)
17. Amaral L, Zarouchas D, Aldeliesten R, Benedictus R. *Engineering Fracture Mechanics* **173**, 41 (2017)
18. Senthil K, Arockiarajan A, Palaninathan R. *Engineering Fracture Mechanics* **154**, 24 (2016)

19. Droubi M, Stuart A., Mowat J., Noble C., Prathuru A, Faisal N. *The Journal of Adhesion* **94**, 347 (2017)
20. Suto H, Yoda K, Watanabe J, Yang L., *Journal of the adhesion society of Japan* **48**, 127 (2012)
21. Blackman B, Hadavinia H, Kinloch A, Paraschi M, Williams J. *Engineering Fracture Mechanics* **70**, 233 (2003)
22. Budzik M, Jumel J, Salem N, Shanahan M, *International Journal of Solids and Structures* **50**, 310 (2013)
23. Shishido. N Kyoto University, Ph.D. thesis, (2009)
24. Chaves F, M.F.S.F. Moura M, Silva L, Dillard D. A., *Engineering Fracture Mechanics* **107**, 38 (2013)
25. Campilho R., Banea M, Neto J, Silva L., *International Journal of Adhesion & Adhesives* **44**, 48 (2013)
26. Kishi H., Naitou T., Matsuda S., Murakami A., Muraji Y., Nakagawa Y., *Journal of the adhesion society of Japan* **41**, 84 (2005)
27. Inoue T., *Journal of the Society of Rubber Science and Technology, Japan* **71**, 186 (1998)

第 6 章

非線形性を考慮した SGA 接着剤のエネルギー解放
率の算出と接着剤層内部の亀裂成長のメカニズムの
推定

1. 緒言

第5章で検討してきたモードⅡのエネルギー解放率の値の過小評価問題について適切な値を導出することが必要であると考えた。これを解決するために、実効的なクラック長さを考慮することを検討した。実効的なクラックの長さは接着の損傷領域で **Fracture process zone** の一部として表現できると考えた。線形破壊力学ではモードⅡのエネルギー解放率は下記の(6-1)式のように記述される。

$$G_{IIc} = \frac{9P^2 a^2}{16b^2 h^3 E} \quad \dots (6-1)$$

(P : 荷重, a : クラック長さ, b : 被着体の幅, h : 被着体の厚さ, E : 被着体ヤング率)

この時のクラック長さ a は、本研究で実施している ENF 試験では予亀裂端部の 25mm が相当する。しかしながら第5章で AE の位置評定の結果から、25mm の位置より長い位置で AE のシグナルは観測されている。接着層の内部が実質的なクラックに相当する状態になっていると仮定することが可能と考えられる。この状況を実効的なクラック (Effective crack) と想定する。

Effective crack の考え方はすでに、Balekman や Budzik らによってモードⅡのエネルギー解放率への算出に活用されている⁽¹⁻²⁾。

実質的な損傷の長さを定義するための手法としてデジタル画像相関によって、被着体表面でのひずみ分布が把握されている。このひずみの値を基準にして実効的なクラック長さ a_{eff} を考察することとした。エネルギー解放率を式 (6-2) として考える。

$$G_{IIc} = \frac{9P^2 a_{eff}^2}{16b^2 h^3 E} \quad \dots (6-2)$$

実効的なクラック長さ a_{eff} の導入は線形破壊の延長線上である。

第6章では、接着部の破壊過程の状態把握を引き続き実施する。AE の到達時間差による位置評定および AE エネルギーの点から考察する。AE 評価の活用に加えて、断面観察や亀裂の進展

に対するカラーチェックなどの確認も行った。接着剤の分析においては TEM 観察，動的粘弾性 評価などの解釈も最新の状況の観点から行った。各種の評価技術の結果を総合し，SGA 接着剤破壊における亀裂の成長メカニズムをより正確に推定する。

2. 実験

2.1 ENF 試験

ENF 試験は，5mm の厚みの鉄板(軟鋼 SS400)を接着して行う。接着剤は直径 0.25mm のガラスビーズを入れて接着厚みを制御する。支点間距離は 120mm で行う。AE センサーを 2 つ使用し，AE シグナルの位置同定を行う。AE 発生位置は中央を基準(0mm)として予亀裂材が存在する方向を正の方向，予亀裂材が存在しない方向を負の方向として設定する。つまり AE の位置は−80mm から +80mm の範囲で設定され，予亀裂は +35mm の位置に端部が来るように設置される。ENF 試験の予亀裂には 0.05mm の PTFE 材を使用する。AE センサーにはシリコングリースを塗って被着体との弾性波の伝達を確保する。AE センサーは共振周波数 150kHz である Vallen 製の AE-150M を使用した(Fig.6-1)。

また，クロスヘッドの方向に対する垂直方向の変位計測も確認するために，Crack Opening Differential (COD)ゲージを鉄板に貼り付けて上板と下板のずれを計測した。COD ゲージは瞬間接着剤を用いて，予亀裂位置の近傍に貼り付ける。AE の計測を行うときにはノイズになる可能性があるため，本報告の AE 計測時には COD ゲージは使用していない。

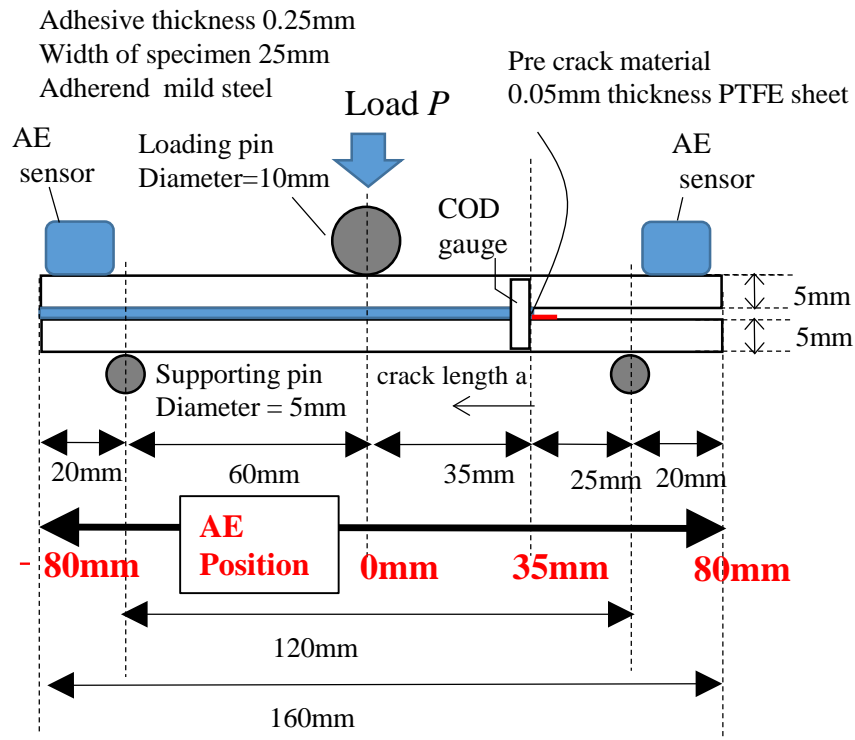


Fig.6-1 Configuration of End Notched Flexure test specimen.

2.2 ダンベル試験

本章では、材料間の破壊の差を考察するために、ダンベル試験を行い、その伸びの程度を調査した。評価した材料は、これまで評価してきている SGA 接着剤 C355SL と NS770 に加え、CTBN((Carboxyl-terminated Butadiene-nitrile) ゴム変性された 2 液エポキシ DP460 (スリーエムジャパン製) ⁽⁴⁾および、一般的な変性シリコーン系接着剤 EP001K (セメダイン製) をあわせて評価した。試験片はあらかじめ、フッ素樹脂で型を取り、そこに接着剤を流し込み硬化させることで得た。ただし、SGA 接着剤に関しては硬化収縮が大きいいため、厚み方向が 1.6mm~2.3mm 程度のずれが生じるなど寸法精度が良好ではない。しかし、材料の伸びに関する有益な情報になると判断して評価を行った。硬化条件はいずれも常温で 24 時間以上放置した後、60℃4 時間の追加加熱を行ったものを用いた。ダンベル試験の形状は、Fig.6-2 示す。この報告では標点間距離 23mm に対する伸び率を計測する。また、接着剤 NS770 にてデジタル画像相関法を活用してポアソン比に相当する変形の縦横比の算出を試みた。

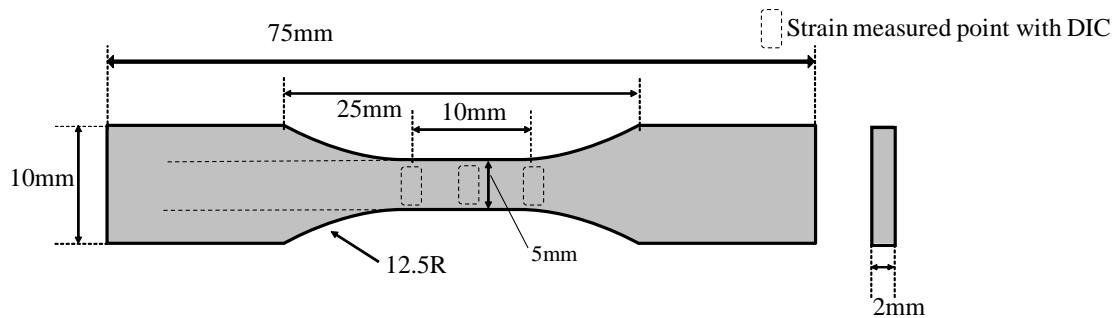


Fig.6-2. Dumbbell specimen

2.3 カラーチェックによる亀裂進展の確認(ENF 試験)

マクロの観察評価として ENF 試験において、試験の途中で荷重を止めて、亀裂の進展状況を把握するべく、カラーチェックの液体を浸透させた。カラーチェックは市販の赤いボールペンのインクをエタノールに溶解させて作製した。荷重は 2000N から 8000N の範囲で行った。浸透液が乾燥した後、ENF 試験片を、バールで接着部を開いて赤インクの浸透状態を確認する。

2.4 断面観察(ENF 試験)

ENF 試験を行う前の試験体および試験を行った後の試験体に対して、断面観察を行い破壊状態を確認した。観察の手法としては、湿式の切断機にて試験片を切断し、エポキシ樹脂で樹脂埋め後、湿式の研磨装置で研磨紙を用いて研磨後、アルミナとシリカを用いてバフ研磨することで仕上げた。その後、NIKON 製の光学顕微鏡で観察を行った。ENF 試験の形状は幅 25mm、長さ 160mm、厚みは 10mm に接着厚みを加えたものであるが、幅 25mm のうち中央の 12.5mm の位置で切断したものと、6mm の位置で切断したものの観察対象にした。幅 6mm の位置で切断したものは研磨して観察する方向が幅 12.5mm 研磨品のものとは逆方向化から研磨しているため本報告に掲載する画像は、DIC の画像や幅 12.5 mm 研磨品と観察方向をそろえるためにデジタル上で左右反転の処理を行った。

断面研磨による観察対象は以下の 3 種類である。接着剤 C355SL の ENF では、荷重を 6051N (変位 1.61mm) で止めて荷重を除荷した。これを 1 つ目の観察対象とした。次ぎに、荷重

6051N を超えて、ピーク荷重 8551N (変位約 3.97mm) を超えて変位 5.59mm (最終荷重 7397N) で止めて除荷したものを 2 つ目の観察対象にした。接着剤 NS770 の ENF 試験片では荷重 4040N (変位 1.30mm) で止めて除荷したものを 3 つ目の観察対象とした。

2.5 破断面観察(せん断と TDCB 試験)

TDCB 試験とシングルラップのせん断については、AE 現象を改めて破断面の観察を改めて実施する。TDCB の試験片、せん断の試験片は同様の形状を用いた。クロスヘッドの移動速度は 1mm/min で測定温度は 23℃である。接着剤も同様の SGA(NS770,C355SL)を評価するが、評価時期が異なるため製造ロットの違いがある。

3. 結果と考察

3.1 実効的なクラック長さから算出するモードIIエネルギー解放率

C355SL 接着剤で接着された ENF 試験において、DIC の所定のひずみの値を実質的なクラック長さ a_{eff} とみなして算出したモードIIのエネルギー解放率と、その時に用いた DIC におけるひずみ値についてその結果をまとめたものを示す(Fig.6-3)。測定数は 4 で実施した。ひずみの 1.5%, 2.4%, 3%, 4%, 6% で算出した。8% DIC ひずみは、5 章で述べたとおり、せん断試験のときの破断直前の DIC ひずみ 8% に相当するものに対応する。その結果をまとめたものを Fig.6-3 に示す。算出に使用する DIC ひずみの値を小さくすると実効的なクラック長さが長くなるためエネルギー解放率は大きな値を示す。測定数 4 個の平均では 8% ひずみでは 755 J/m² 程度であったが、DIC ひずみが 2.4% では 2773 J/m², DIC ひずみ 1.5% では 3311 J/m² を示した。前章で問題となった C355SL のモード I のエネルギー解放率 G_{Ic} (1387J/m²) よりモード II のエネルギー解放率が小さい値を示すという問題は有効クラック長さの導入により解決された。2.4% の DIC ひずみから算出した G_{IIc} の値は G_{Ic} の 2 倍に相当する(2773/1387)。2 例分のエネルギー解放率とひずみの関係の計測結果例を示す(Fig.6-4, Fig.6-5)。

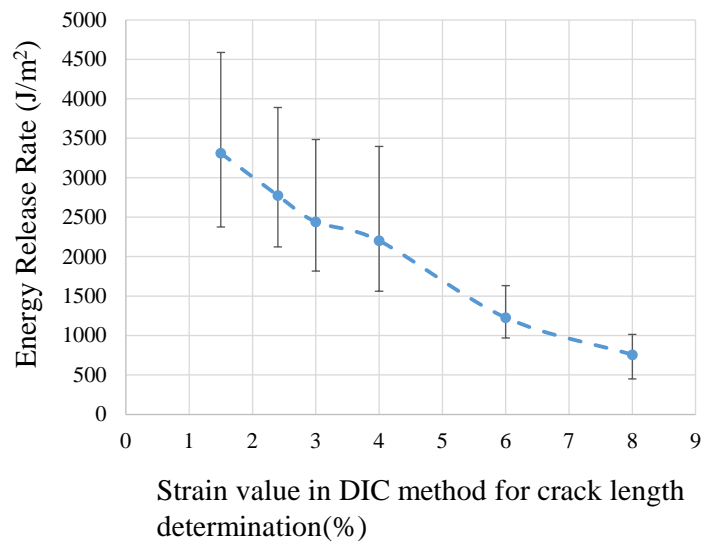


Fig.6-3. Energy release rate calculated based on effective crack length.

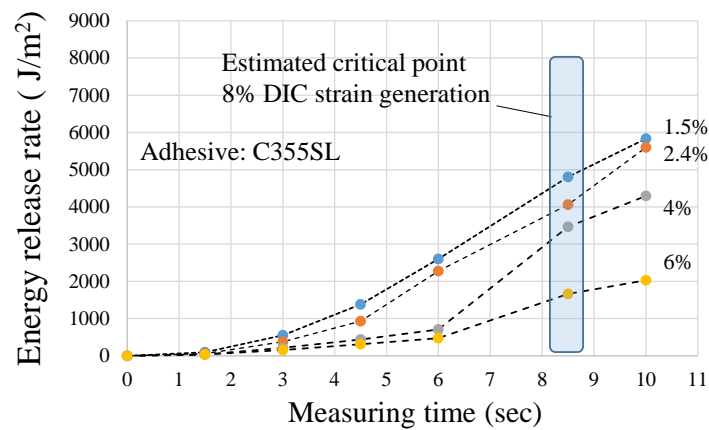


Fig.6-4 Energy release rate G_{IIc} based on effective crack length (Adhesive C355SL, Measurement 1).

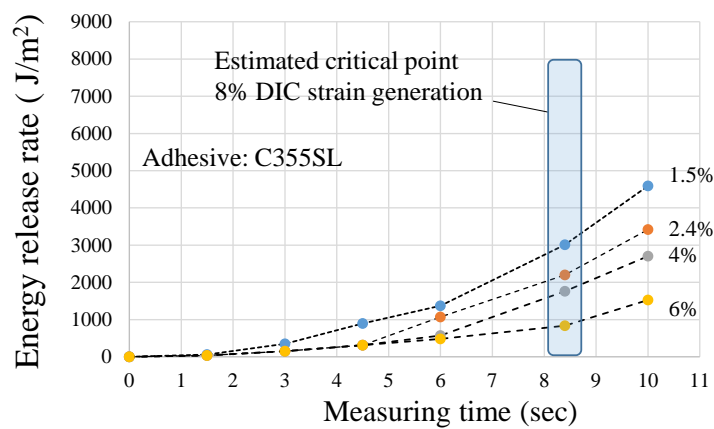


Fig.6-5 Energy release rate G_{IIc} based on effective crack length (Adhesive C355SL, Measurement 2).

NS770 接着の ENF 試験では C355SL 接着の ENF 試験と異なり、AE シグナルが殆ど検出されていない。C355SL では臨界ひずみ 8%に対して 3 割にあたる 2.4%あたり前後の DIC ひずみに着目して有効クラック長さを算出した。NS770 についても臨界ひずみ 7%にの約 3 割の DIC ひずみ(2.3%), 約 5 割の DIC ひずみ(3.5%), 約 7 割の DIC ひずみ(5%)という点に着目して実効的なクラック長さを整理した。NS770 では実効的なクラックを用いた G_{IIc} では 2.3%の DIC ひずみでは 1679 J/m^2 , 3.5%DIC ひずみでは 1283 J/m^2 , 5%DIC ひずみでは 708 J/m^2 で, 7%DIC ひずみでは 348 J/m^2 となった(Fig.6-6)。

測定 2 のほうでは、実効的なクラックを用いた G_{IIc} では 2.3%ひずみでは 2249 J/m^2 , 3.5% DIC ひずみでは 1560 J/m^2 , 5%DIC ひずみでは 1018 J/m^2 で, 7%DIC ひずみでは 520 J/m^2 となった(Fig.6-7)。

C355SL では臨界ひずみの約 3 割前後の値が妥当性のある結果であった。NS770 に関しても暫定的な判断として、測定 1, 測定 2 いずれの測定でも 2.3%を用いた値を用いてモード I との比較を行う。前章で問題となった NS770 のモード I のエネルギー解放率 G_{Ic} (860 J/m^2)よりモード II のエネルギー解放率が小さい値を示すという問題は J 積分や有効クラック長さを導入することで解決可能である。2.3%ひずみの G_{IIc} で値を G_{Ic} で除した場合、測定 1 が 1.95 倍 ($1679/860$) , 測定 2 が 2.61 倍 ($2249/860$) の値がモード I とモード II のエネルギー解放率の比率となる。

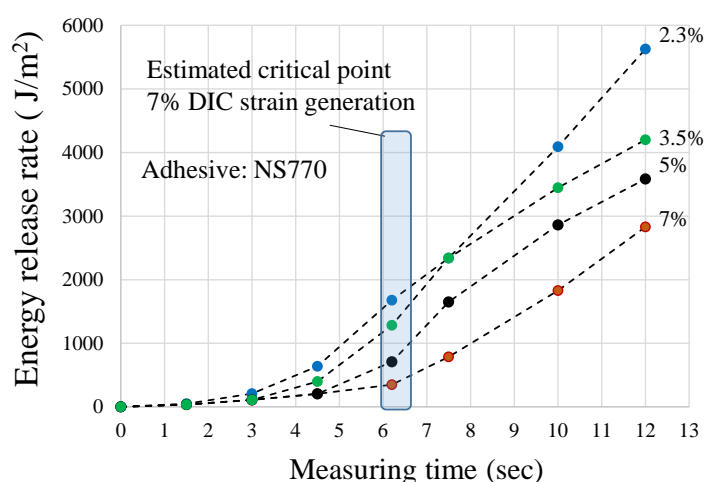


Fig.6-6 Energy release rate G_{IIc} based on effective crack length (Adhesive NS770, Measurement 1).

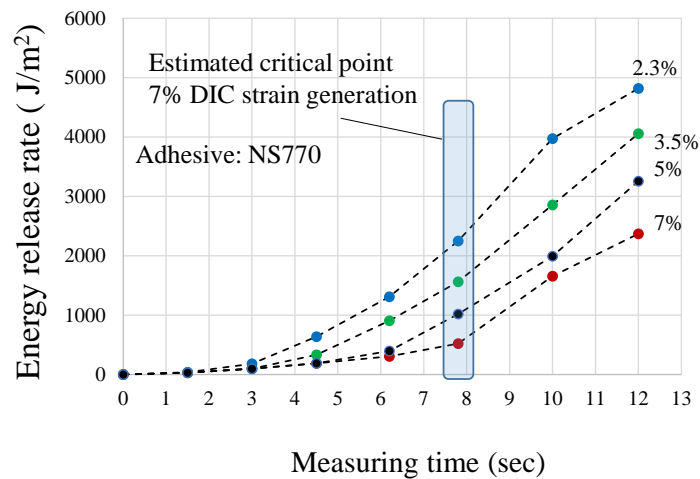


Fig.6-7 Energy release rate G_{IIc} based on effective crack length (Adhesive NS770, Measurement 2).

3.2 横方向の変化の確認（COD ゲージ）

クロスヘッドの移動に対して垂直の方向（横方向）の変位について COD ゲージ(crack opening differential)を用いて計測した。C355SL では ENF 試験でのピークの値を越えた変位 3mm 以上で傾きが変わっている。測定数を増してもその傾向は変わらず再現性が確認される(Fig.6-8)。より詳細にグラフを拡大して変位の傾向を確認すると、およそ変位が 1.5mm に到達すると、COD ゲージは測定 1 では 0.15mm に到達し、測定 2 では 0.17mm に到達している(Fig.6-9)。COD ゲージの変位は概ねクロスヘッドの移動量の 10 分の 1 の移動量になっている。ENF 試験ではクロスヘッドの移動量は 10mm/min で行っている。前章でせん断試験は 1mm/min のクロスヘッド速度で実施しており、ほぼ同等のひずみ速度の試験になっていることを確認することができた。また、COD ゲージの変位が 0.06mm や 0.07mm に到達するまでは曲線的であり、それ以上の変位になる領域でクロスヘッドの変位と COD ゲージの変位が安定して単調増加していることがわかる。

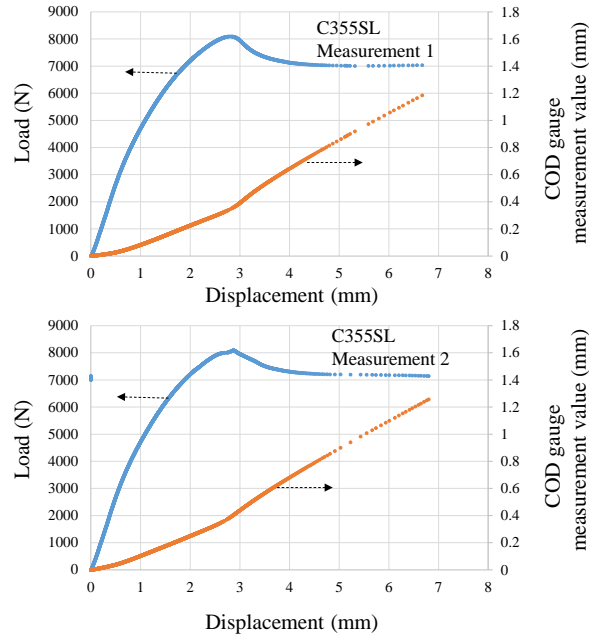


Fig.6-8 Load- Crosshead displacement –COD gauge displacement diagram on ENF test (Adhesive: C355SL)

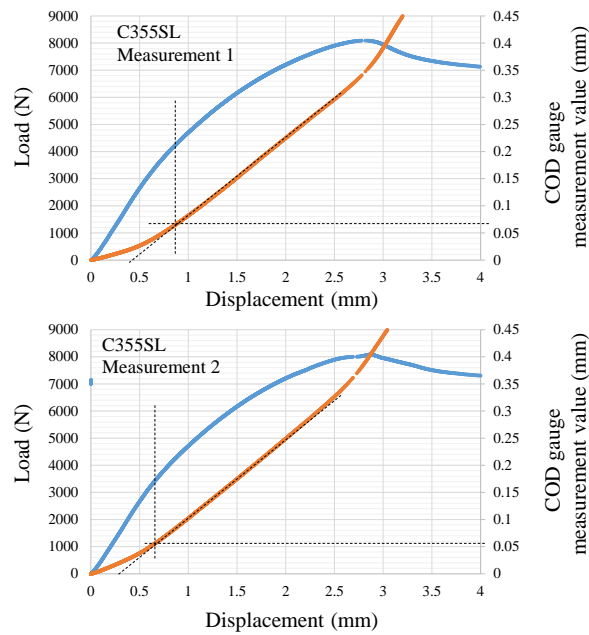


Fig.6-9 Load- Crosshead displacement –COD gauge displacement diagram on ENF test (Adhesive: C355SL)

COD ゲージを用いた変化の計測はもう一つの SGA 接着剤 NS770 でも実施した。こちらは荷重変位曲線で明瞭なピークがあらわれていないものの、クロスヘッドの変位が 3mm を越えたところで変曲していることがわかる(Fig.6-10)。また、詳細に COD 変位を確認すると COD ゲージ

の変位が 0.23mm あたりに到達した後に、クロスヘッド変位と COD ゲージの変位がほぼ単調増加することが確認される(Fig.6-11)。これらの違いも接着剤の物性が明確に顕在化しているといえる。

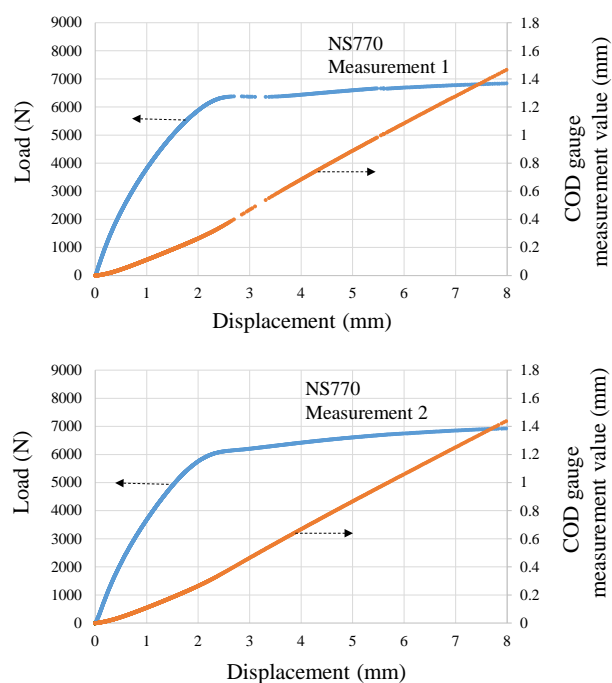


Fig.6-10 Load- Crosshead displacement –COD gauge displacement diagram on ENF test (Adhesive: NS770)

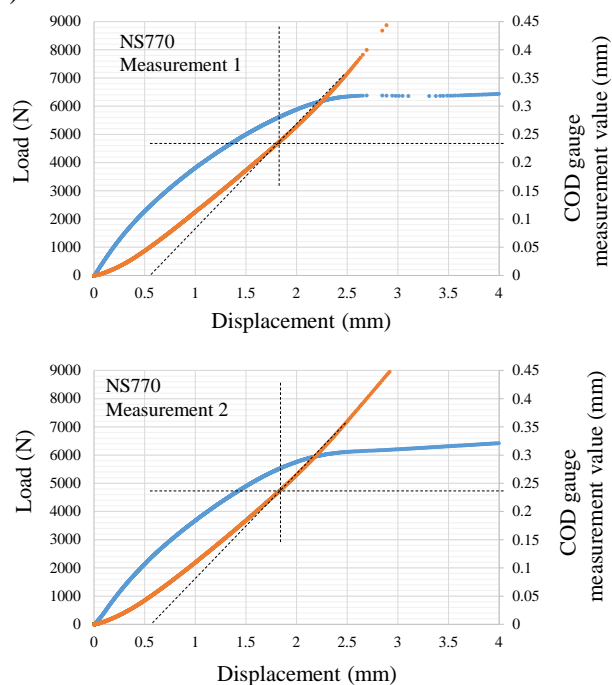


Fig.6-11 Load- Crosshead displacement –COD gauge displacement diagram on ENF test (Adhesive: NS770)

3.3 接着剤のダンベル物性

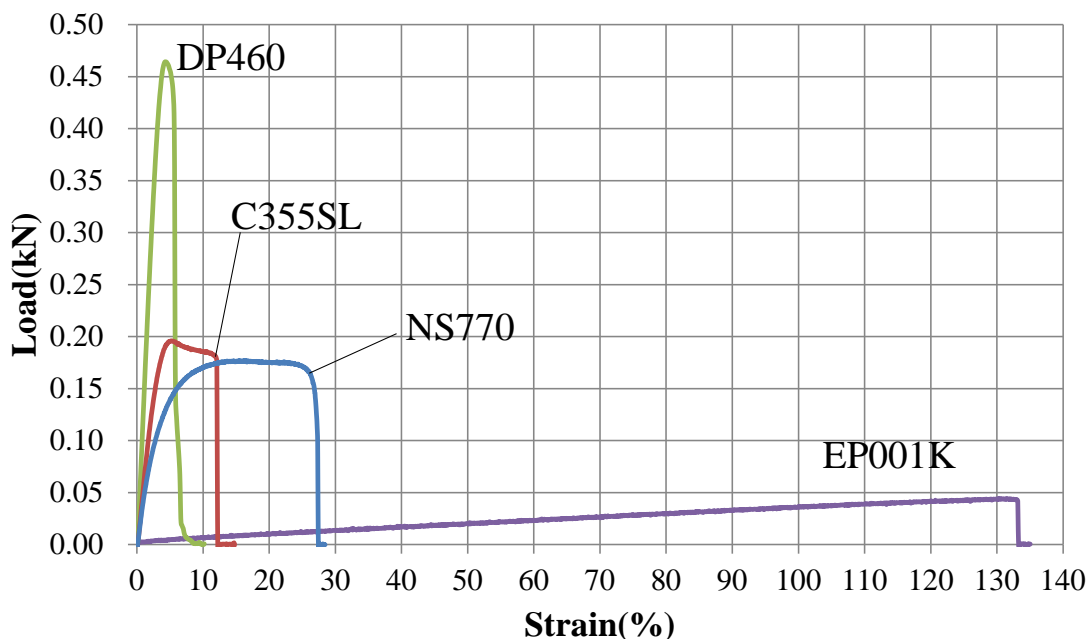


Fig.6-12 Strain-Load curb on dumbbell specimen at 10mm/min test speed

Fig.6-12に今回接着体として評価してきたSGA接着剤2種と汎用のエポキシ系接着剤DP460(スリーエムジャパン製), 変性シリコーン系接着剤EP001K(セメダイン製)のダンベル試験片の結果を示す。これらは試験速度は10mm/minで, 測定時の温度は $23\pm 2^{\circ}\text{C}$ で実施した。ゴム変性エポキシ系のDP460は破断ひずみが6%, SGAのC355SLは破断ひずみが12%, NS770は破断ひずみが28%, 変性シリコーン系EP001Kは133%の破断ひずみを示した。SGAの2種類の接着剤は, ピークに到達してから, 暫く概ね平坦な領域が存在する。

ひずみ0.5%から1.0%の領域でヤング率を求めたところ, DP460が1.46GPa, EP001Kは4.0MPaであった。SGA接着剤のC355SLとNS770は硬化収縮が大きく, 断面積が想定 10mm^2 (幅5mm, 厚み2mm)から目減りして狙い寸法からのずれが生じる。そのためヤング率を算出する際に必要なサンプルの幅と厚さを個別に形状測定して再度測定してからヤング率を算出した。SGA接着剤NS770, C355SLではその結果をTable 6-1に示す。これらはひずみ0.4%から0.8%の値を用いて算出した。

Table 6-1 Results of dumbbell tensile test.

Adhesive material	C355SL		NS770	
Crosshead speed (mm/min)	1	10	1	10
Specimen width (mm)	3.83	3.71	5.65	4.90
Specimen thickness (mm)	1.75	2.02	1.85	2.20
Breaking Elongation (%)	22.7	14.2	32.9	27.3
Young's modulus (GPa)	0.38	0.57	0.30	0.47

また、NS770 の 1mm/min の試験ではデジタル画像相関を用いてポアソン比の計測を試みた。ポアソン比はひずみ 0.4%の地点で 0.45、ひずみ 0.65%の地点で 0.47 を示した。CTBN 変性のゴム変性のエポキシ接着剤 D460 はポアソン比が 0.4 と報告されている⁽⁷⁾。また、C355SL 接着剤と同様の機械特性を示すデンカ製の MMA モノマー系の SGA 接着剤 M372-20 はポアソン比が 0.46 と報告されている⁽⁸⁾。今回の測定は硬化収縮の影響はあるものの、物性の実体を示していると考えられる。0.45 や 0.46 のポアソン比はゴムのポアソン比に近いものであり、今回評価している SGA はゴム(エラストマー)の影響が強く現れているのは明らかである。

Fig.6-4 と Fig.6-5 では 接着剤 C355SL にて、ひずみ 1.5%, 2.4%, 3%, 4%, 6%に着目してデータ分析をおこなっている。Fig.6-7, Fig.6-8 では接着剤 NS770 にて、ひずみ 2.3%, 3.5%, 5%, 7%に着目してデータ分析をおこなっている。ダンベル試験より見積もられたヤング率をひずみに乗じた値は応力に相当する。その結果を Table 6-2 に示す。ENF 試験における横方向の位置ズレの速度から、適用する値としては試験速度 1mm/min のダンベル試験片から得たヤング率の適用が妥当である。C355SL での ENF 試験で AE シグナルが DIC でのひずみ 2.4%周辺で生じているが、対応する応力としては 0.38GPa を乗じて 9.1MPa 相当であると推定できる。これらの応力は破壊状態を定量的に考察する際の目安にできる。

Table 6-2 A value obtained by multiplying the value of strain by Young's modulus,
(a value corresponding to stress).

Strain (%)	C355SL Young's Modulus (GPa)	NS770 Young' s Modulus (GPa)	The value multiplied by strain and Young's modulus (MPa)
1.5	0.38	-	5.7
2.4		-	9.1
3.0		-	11.4
4.0		-	15.2
6.0		-	22.8
2.3	-	0.30	7.5
3.5	-		10.5
5.0	-		15.0
7.0	-		21.0

3.4 ENF 試験片に対するカラーチェック

マクロの観察評価として C355SL で接着した ENF 試験において、試験の途中で荷重を止めて、亀裂の進展状況を把握するために、カラーチェックの液体を浸透させる。この試験では複数のサンプルを準備し、まず 1 つのサンプルで荷重変位曲線を得る。その後、途中で停止する荷重を決める。C355SL の ENF 試験では、途中で止めるが荷重は 2000N, 4000N, 6000N, 8000N とした。所定荷重で止めて除荷した後、カラーチェックの液に浸す。その後、カラーチェックの液から取り出し、浸透液を乾燥させた後、ENF 試験片を、バールで接着部を開いて浸透液の状態を確認した。しかしながら、カラーチェックの浸透は全く認められなかった(Fig.6-13 ,Fig.6-14)。損傷はおこっているものの、外部から内部へカラーチェックのインクが浸透するような連続的な亀裂は生じていない。NS770 での ENF の試験では、途中で止めるが加重は 1000N, 2000N, 3000N, 6000N とした。こちらの接着剤でも C355SL の時と同様の評価を行った。こちらも、接着層に明確なカラーチェックのインクが浸透する様子は認められなかった(Fig.6-15, Fig.6-16)。

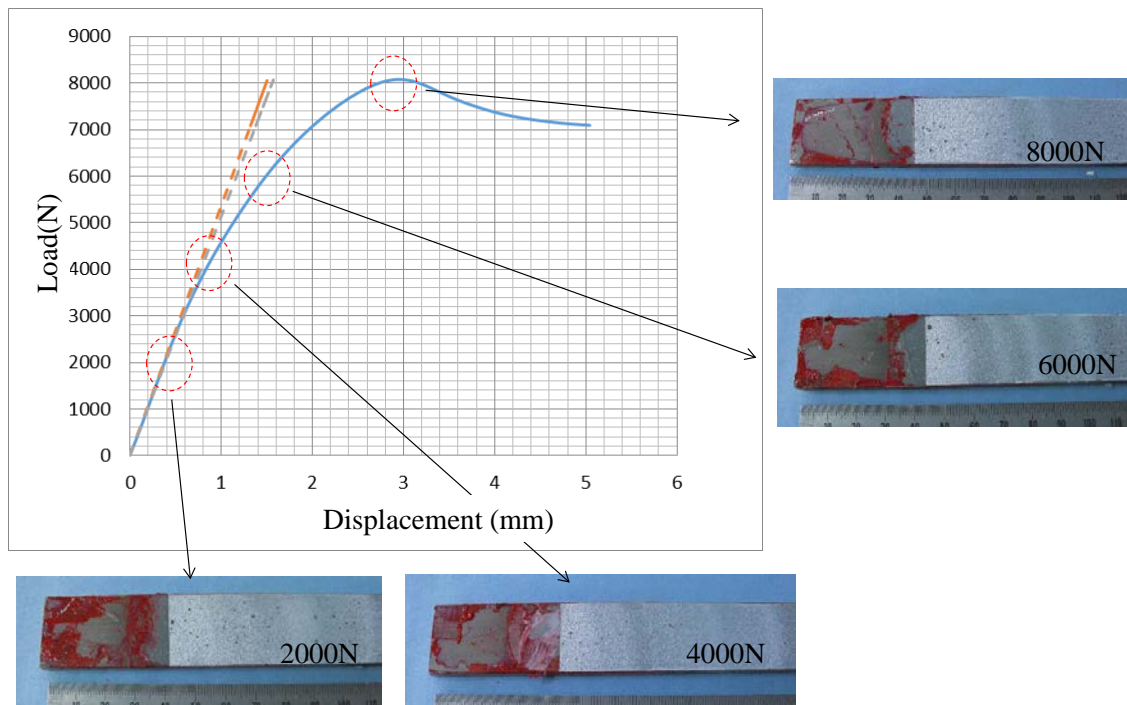


Fig.6-13 Load-displacement curve and red ink penetration results (adhesive C355SL)

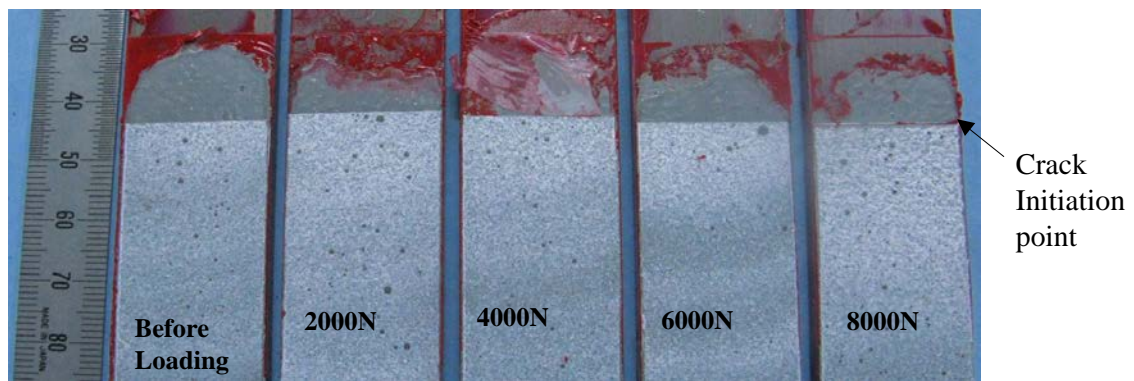


Fig.6-14 Observation of crack progress on C355SL bonded ENF joint (ink penetration)

- (1) ENF test :The loaded load was stopped halfway.(2000N,4000N,6000N,8000N)
- (2) The red color ink was dissolved in ethanol and allowed to enter the adhesion part.
- (3) The ethanol with ink was made to penetrate into the adhesion part.
- (4) Ethanol was removed by drying.
- (5) The adhesion part was forcibly split and the invasion of ink was confirmed.

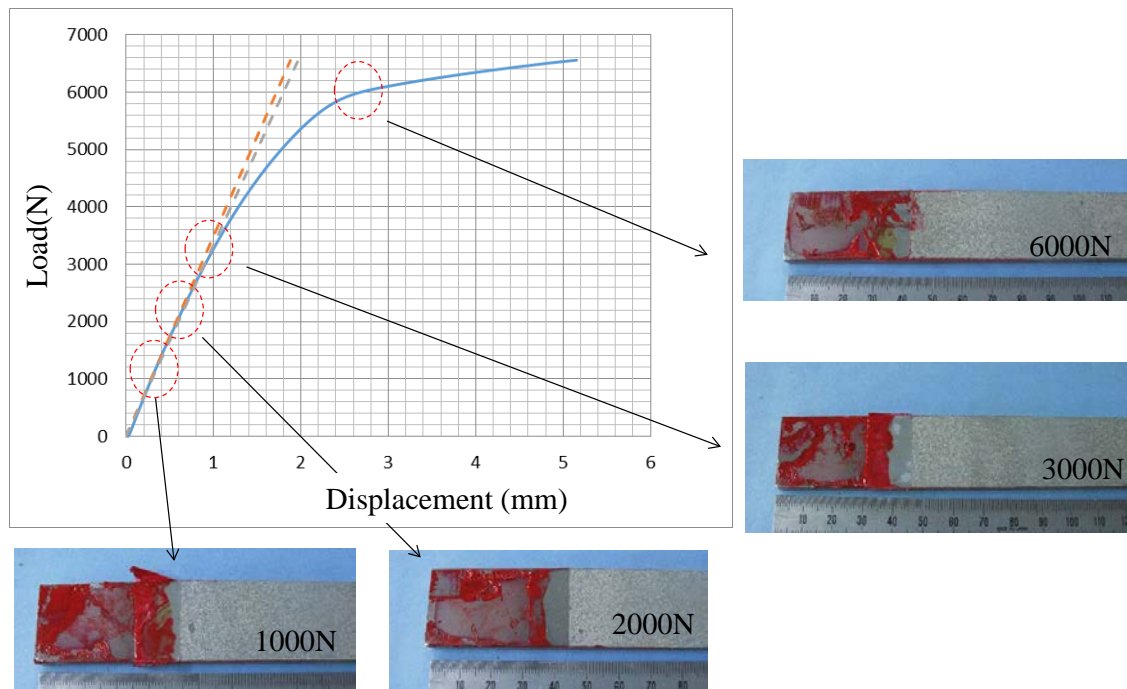


Fig.6-15 Load-displacement curb and red ink penetration results (adhesive NS770)

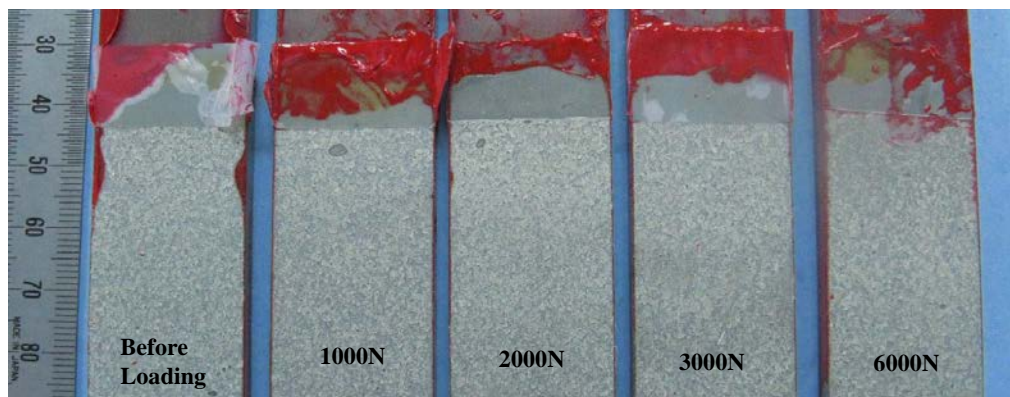


Fig.6-16 Observation of crack progress on NS770 bonded ENF joint (ink penetration)

- (1)ENF test :The loaded load was stopped halfway.(1000N,2000N,3000N,6000N)
- (2)The red color ink was dissolved in ethanol and allowed to enter the adhesion part.
- (3) The ethanol with ink was made to penetrate into the adhesion part.
- (4) Ethanol was removed by drying.
- (5) The adhesion part was forcibly split and the invasion of ink was confirmed.

3.5 断面観察(ENF 試験片)

この節では、ENF 試験片の接着部でどのような損傷が生じるかを直接顕微鏡にて確認す

る。対象の ENF 試験片は 25mm の幅があるが、これを切断し 12.5mm の位置と 6mm の位置を切断し研磨処理を行った後に観察する。試験片にはあらかじめ荷重を負荷し、狙いの負荷に到達すればすぐに除荷する。観察前の事前情報としてデジタル画像相関を取得し、除荷する直前のひずみ分布状態を把握する。観察するサンプルの条件と図の番号の一覧を Table 6-3 に示す。

Table 6-3 Condition of observation object, image of DIC, number correspondence list of observation result

Condition	Adhesive	Applied Load	Crosshead displacement	Cutting point	DIC picture number	Observation figure number	Remarks
1	C355SL	0N	0mm	1mm	-	Fig.6-19	before applying load
2	NS770	0N	0mm	1mm	-	Fig.6-25	before applying load
3	C355SL	6051N	1.61mm	12.5mm	Fig.6-17	Fig.6-20	
4				6mm		Fig.6-21	
5	C355SL	MAX.8551N	5.59mm	12.5mm	Fig.6-18	Fig.6-22, Fig.6-23	
6	NS770	4040N	1.30mm	12.5mm	Fig.6-24	Fig.6-26	
7				6mm		Fig.6-27	

・断面観察 接着剤 C355SL : ENF 試験での断面観察

接着剤 C355SL の ENF 試験では荷重を、臨界荷重近傍の 6051N で止めたものと、クロスヘッドの変位が 5.59mm と大きく変形させたものを断面観察の対象にした。これらを樹脂に埋め込んだ後、湿式の切断および研磨加工を行い、光学顕微鏡で破壊箇所を観察した。観察面は 25mm 幅のほぼ中央部（端部から 12.5mm 近傍の位置）を確認した。これらの試験の DIC におけるひずみ分布の画像を Fig.6-17(a) (b) および 6-18(a) (b)に示す。荷重変位曲線を Fig.6-17(c), 6-18(c)に記す。また、観察時には研磨等での損傷も考えられる。試験で生じた亀裂か否かを判定するために、荷重負荷を行わない試験体の観察も行った(Table 6-3, condition 1,2)。

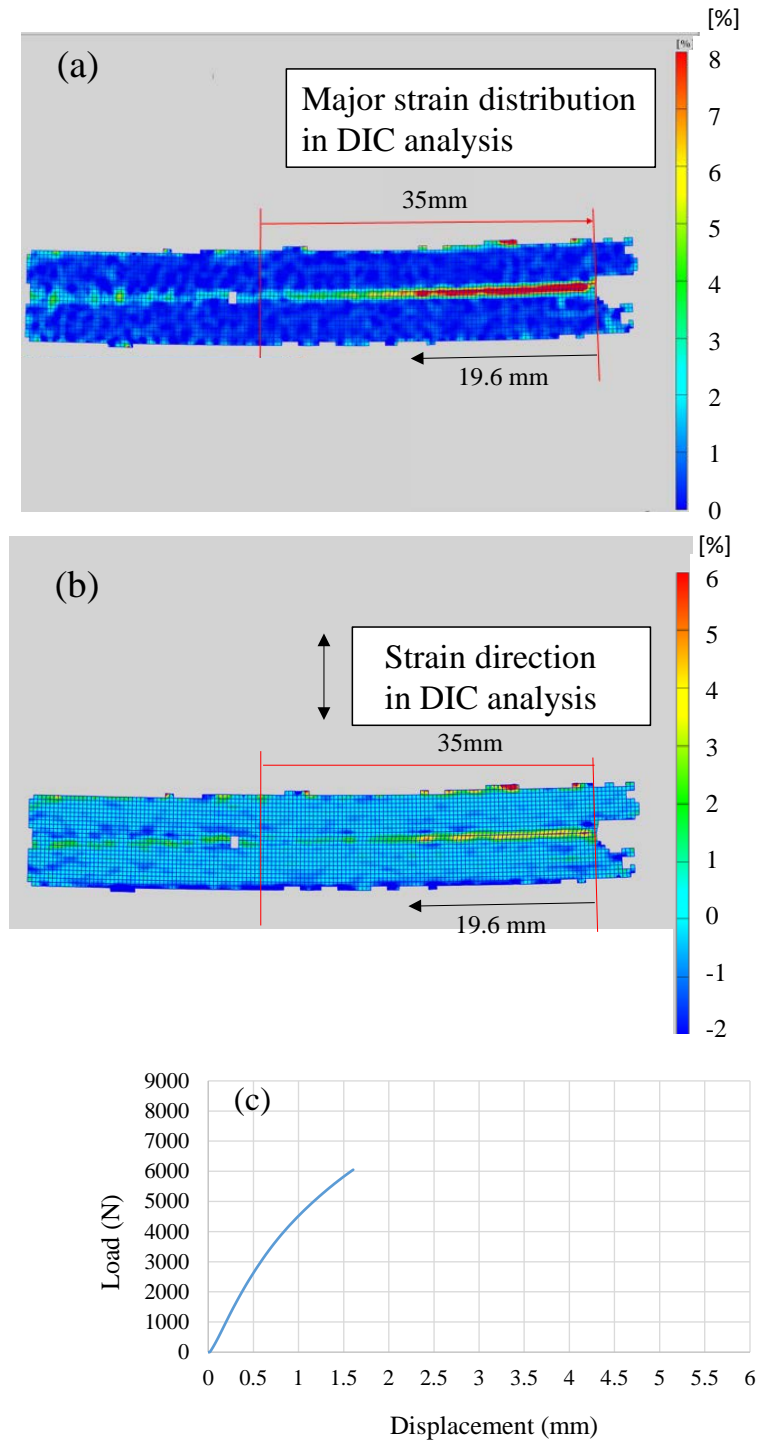


Fig.6-17 Basic information on specimens for observing the polished surface (C355 SL - 6051 N load))

- (a)Major strain distribution in DIC method on C355SL ENF joint applied 6051N load.
- (b)Vertical strain distribution in DIC method on C355SL ENF joint applied 6051N load.
- (c)Relation between crosshead displacement and load.

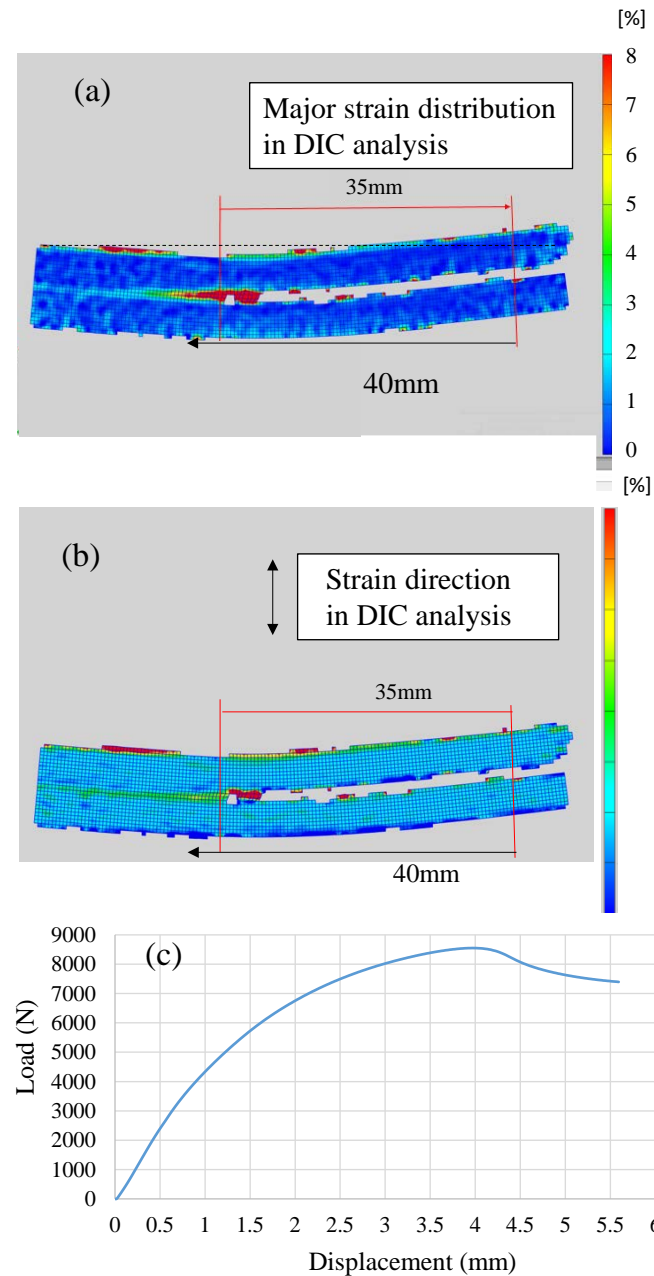


Fig.6-18 Basic information on specimens for observing the polished surface (C355 SL -5.59mm displacement)

- (a) Major strain distribution in DIC method on C355SL ENF joint applied 5.59mm displacement.
- (b) Vertical strain distribution in DIC method on C355SL ENF joint applied 5.59mm displacement.
- (c) Relation between crosshead displacement and load.

荷重負荷を行っていない試験体の断面観察結果を Fig.6-19 に示す。接着厚みは、本観察体では 210 μ m 程度である。また、Fig.6-19 の拡大部 A や拡大部 B では、スペーサ機能として接

着剤にあらかじめ添加されているポリエチレンと考えられる部分も確認された。また、わずかながら、未負荷品においても表面に傷がつく。これは研磨工程で不可避なものである(Fig.6-19 Enlarged B)。これらの状態からの傷の増加分に着目して断面観察を行う。

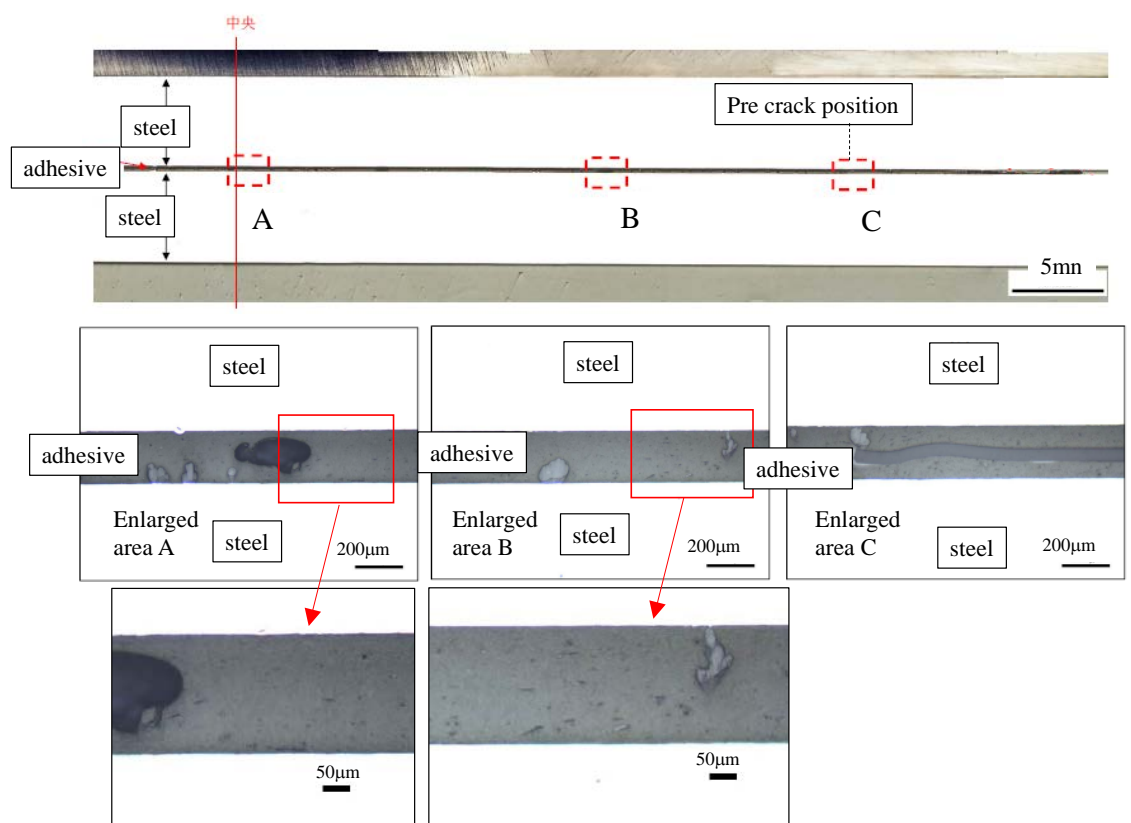


Fig. 6-19 Observation of cross section on C355SL bonded ENF specimen before applying load

次に 6051N を荷重印加した C355SL 接着の ENF 試験片の断面観察結果を示す(Fig.6-20, Fig.6-21)。6051N 負荷の段階で、既に予亀裂から支点部（中央部）を越える位置まで、巨大な亀裂が届いていることが認められた。接着層の厚みも試験前は 250 μ m 前後で制御されているが、荷重印加後では 400 μ m 以上に広がっている。また、巨大な亀裂の周辺には、水平方向に幅 4 \sim 7 μ m、長さ 15 \sim 35 μ m 程度の扁平状の小さな亀裂が多数発生していた。これは幅 12.5 mm の位置を観察したもの(Fig.6-20)、幅 6mm(Fig.6-21)の位置を観察したものの両方に共通している。

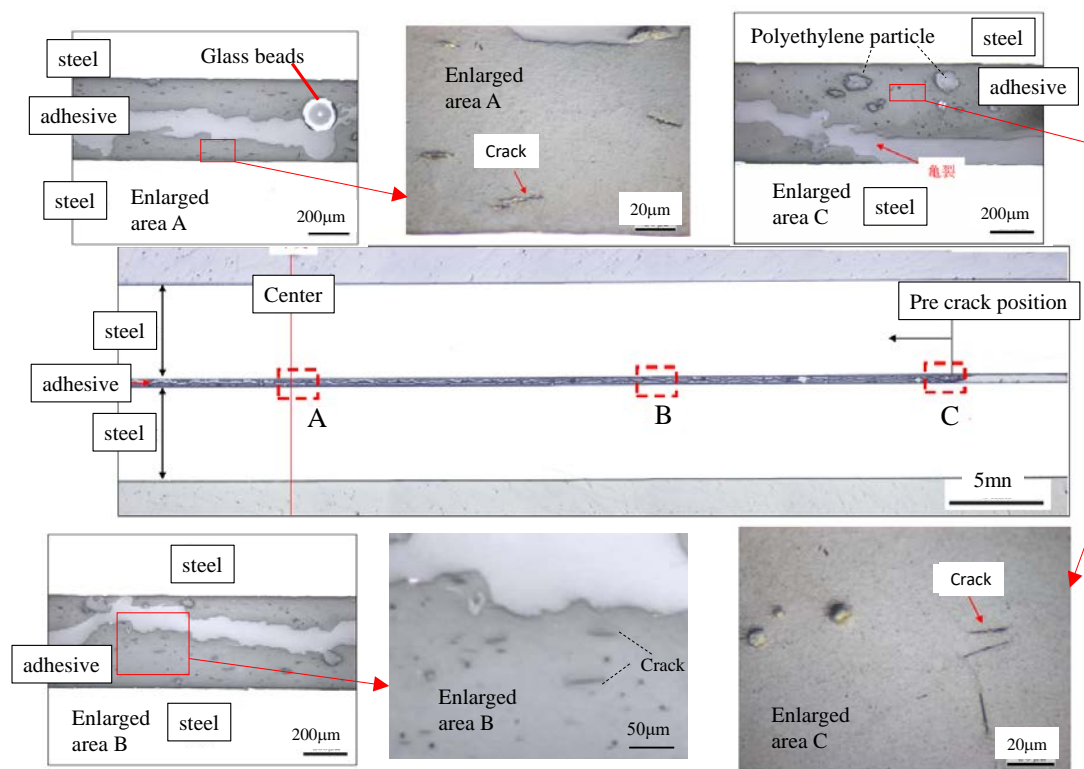


Fig.6-20 Observation result of polished cross section at the position of 12.5 mm from the side of the ENF test specimen: Adhesive C355SL, applied load 6051N

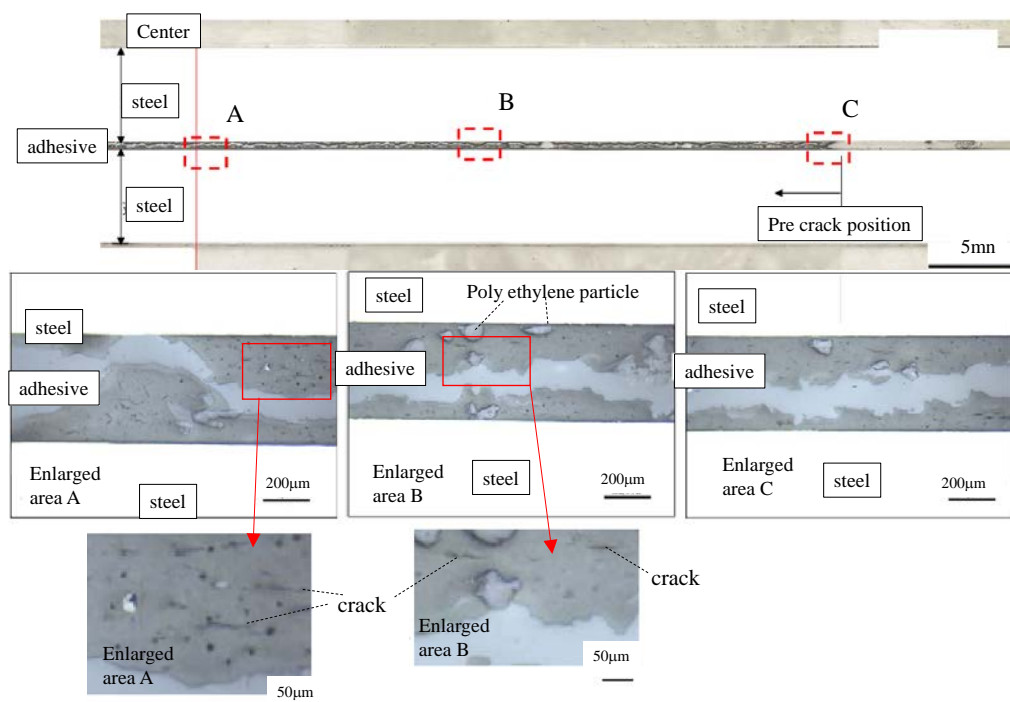


Fig.6-21 Observation result of polished cross section at the position of 6 mm from the side of the ENF test specimen: Adhesive C355SL, applied load 6051N.

次に 5.59mm まで大変形（最大荷重は 8551N）させた断面観察の結果を示す(Fig.6-22, Fig.6-

23)。このサンプルでは接着厚みは $560\mu\text{m}$ 以上に広がっていた。中央部を超えた巨大亀裂の先端付近には、Z字のような模様の亀裂（幅 $5\sim 12\mu\text{m}$ ，長さ $70\sim 120\mu\text{m}$ 程度）の存在や巨大亀裂に成長する直前のような規模の亀裂が認められた。Z字型のクラック模様は多軸の応力が働く時に生じるキンクに類するものであると判断される⁹⁾。微小クラックは3点曲げの中央部より(予亀裂のない)左側まで到達している。予亀裂からおよそ 40mm の位置(Fig. 6-22 Enlarged C)では、大きなクラックは接着剤層から上側の鉄板へ明らかに移行しており細い連続的なクラック(continuous crack)が上側の鉄板の近傍で予亀裂から 44mm の位置まで伸びている。この様子は DIC のひずみ分布とも同様である。

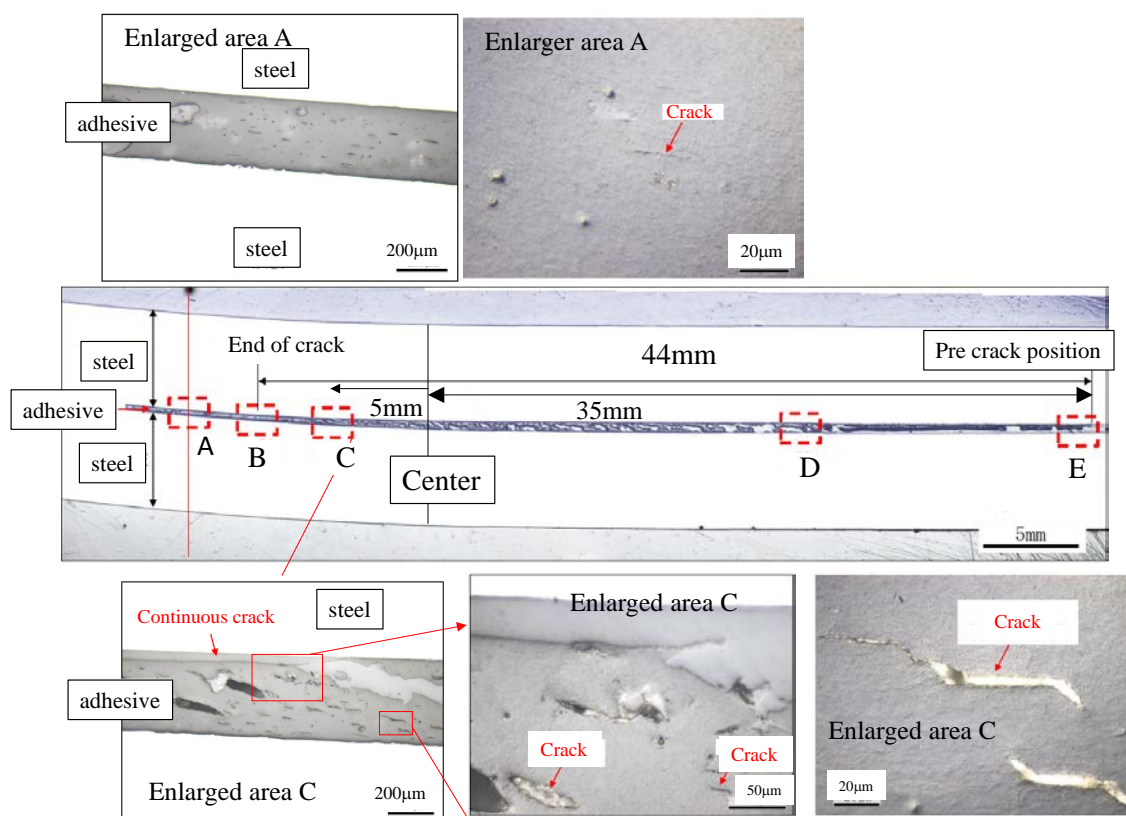


Fig.6-22 Observation result of polished cross section at the position of 12.5 mm from the side of the ENF test specimen: Adhesive C355SL, 5.59mm displacement. (Enlarged area A and C)

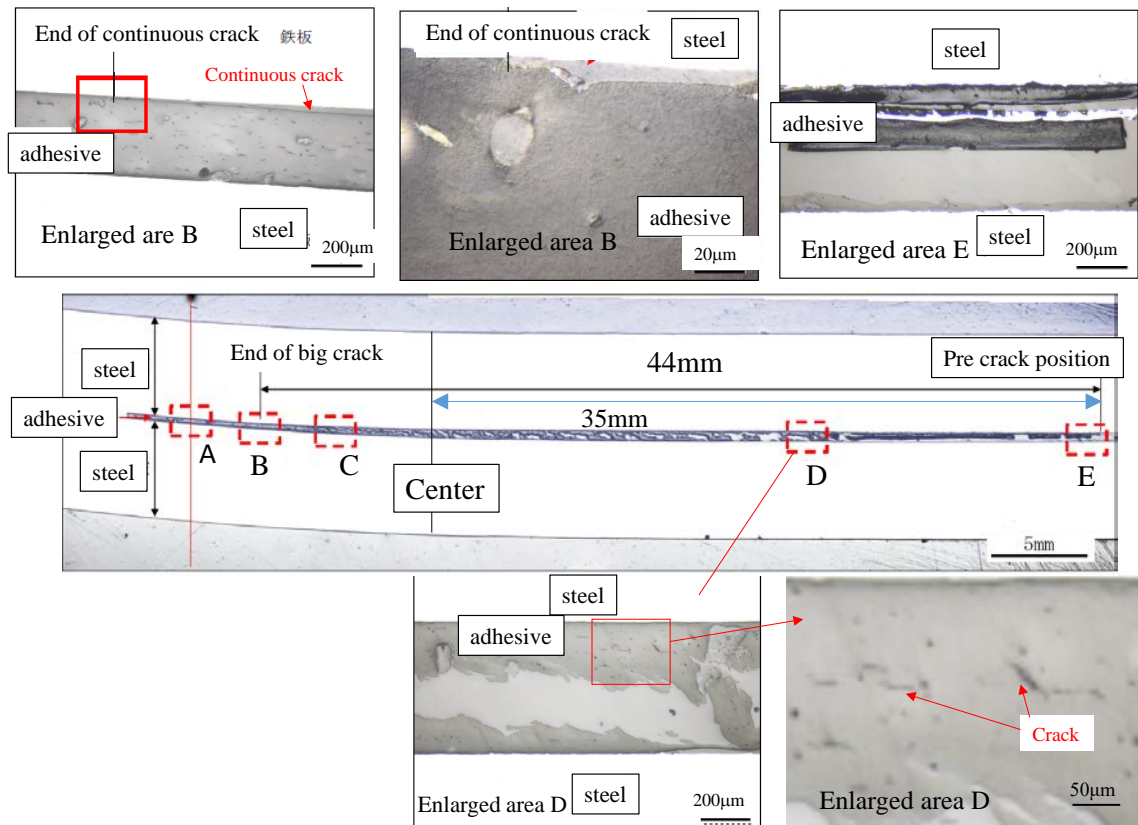


Fig.6-23 Observation result of polished cross section at the position of 12.5 mm from the side of the ENF test specimen: Adhesive C355SL, 5.59mm displacement. (Enlarged area B, D and E.)

NS770 の 4040N 負荷時の DIC におけるひずみ分布を Fig.6-24 に示す。

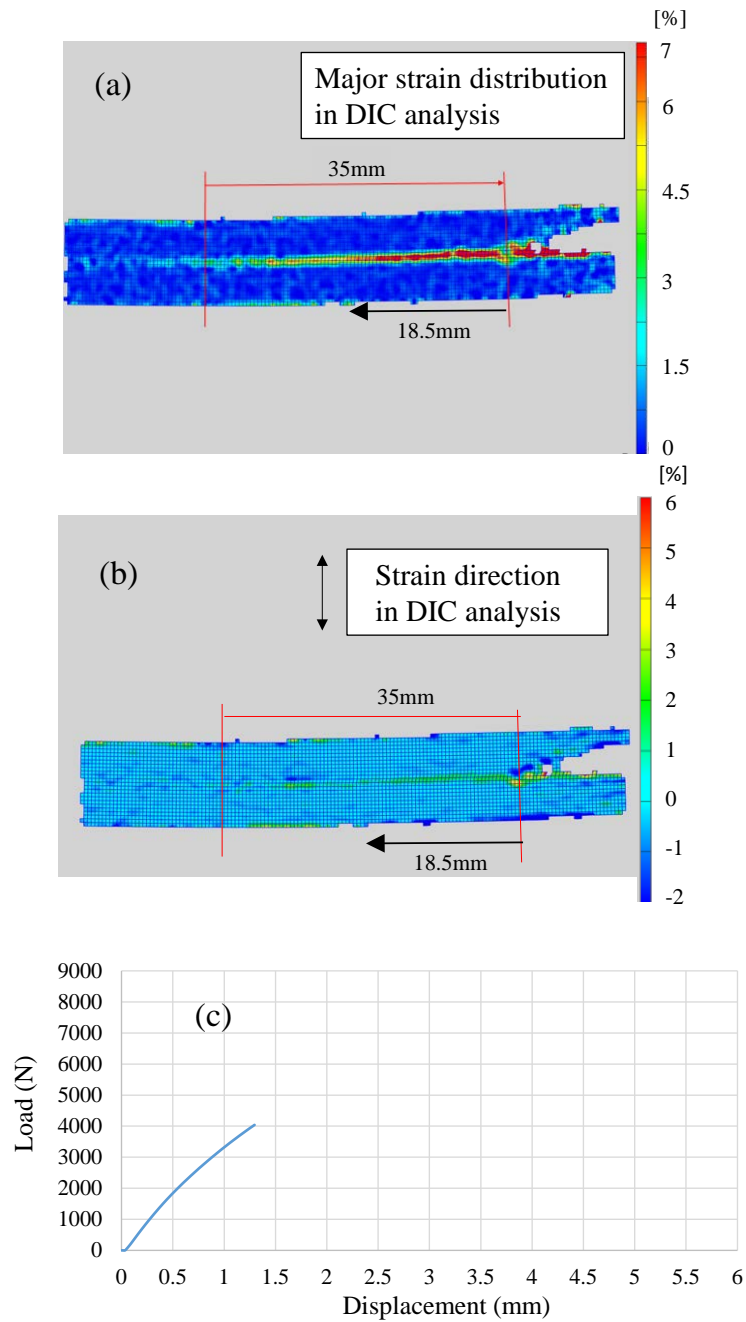


Fig. 6-24 Basic information on specimens for observing the polished surface (NS770 - 4040 N load))

(a)Major strain distribution in DIC method on NS770 ENF joint applied 4040N load.

(b)Vertical strain distribution in DIC method on NS770 ENF joint applied 4040N load.

(c)Relation between crosshead displacement and load.

NS770 で荷重をかけた試験片と同条件で作製したサンプルでは接着厚みが $220\mu\text{m}$ 程度であった。未負荷の断面観察をした結果を示す(Fig. 6-25)。こちらの接着剤についても研磨による

傷がわずかに確認される。この状態との差分に着目して観察を行う。

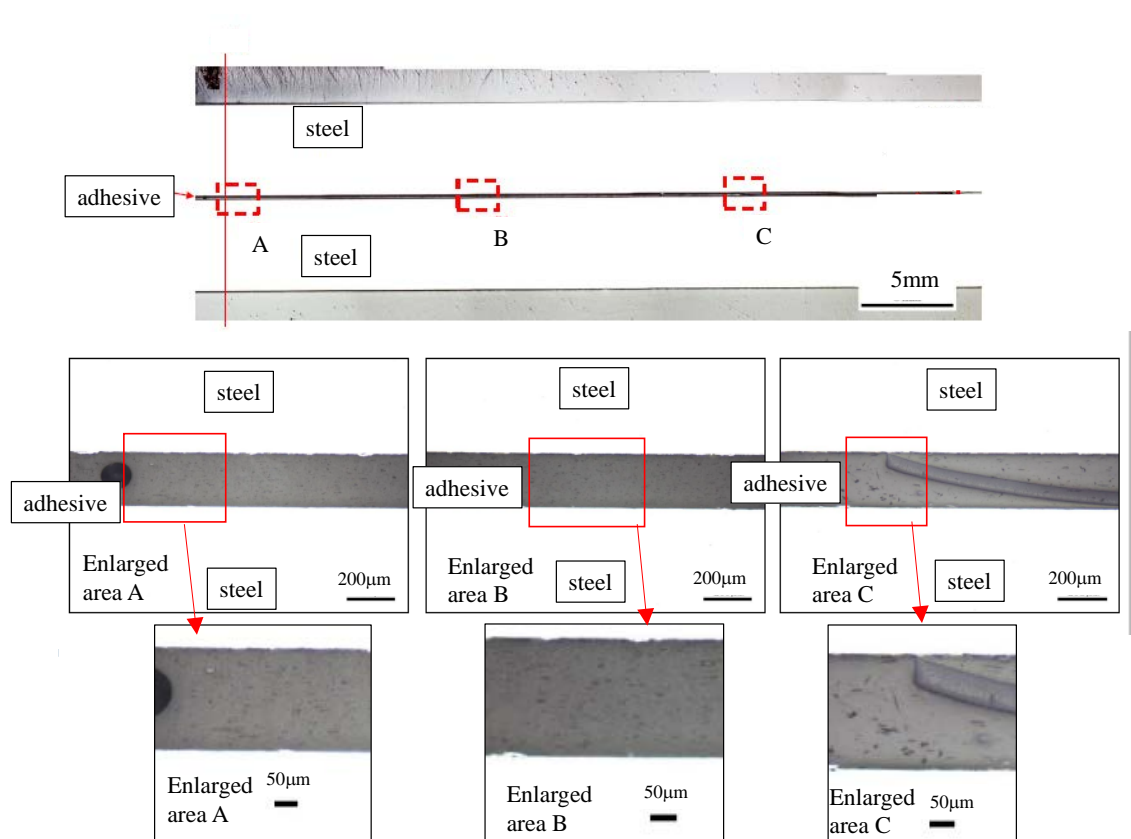


Fig. 6-25 Observation result of polished cross section of the ENF test before applying load: Adhesive NS770

4040N まで荷重を负荷された NS770 で接着された ENF 試験片の断面では、接着厚みは約 $350\mu\text{m}$ に増加している(Fig.6-26)。微小クラックの大きさは、幅 $5\sim 10\mu\text{m}$ 程度であり、長さは $50\sim 80\mu\text{m}$ の長さのものが散見された。また微小クラックの多くはせん断方向であるが、部分的に斜め方向のクラック(diagonal crack)が発生していることが認められる (Fig.6-26, Enlarged A)。巨大な亀裂は幅 12.5mm 位置を切断後研磨したサンプルでは予亀裂から 13mm の長さで確認され、幅 6mm 位置を切断研磨したサンプルでは予亀裂から 19.9mm の長さで確認された(Fig. 6-27)。DIC における表面でのひずみ 7%の距離は予亀裂位置から 18.5mm である。DIC の 7%ひずみと内部の亀裂の距離は比較的一致している。

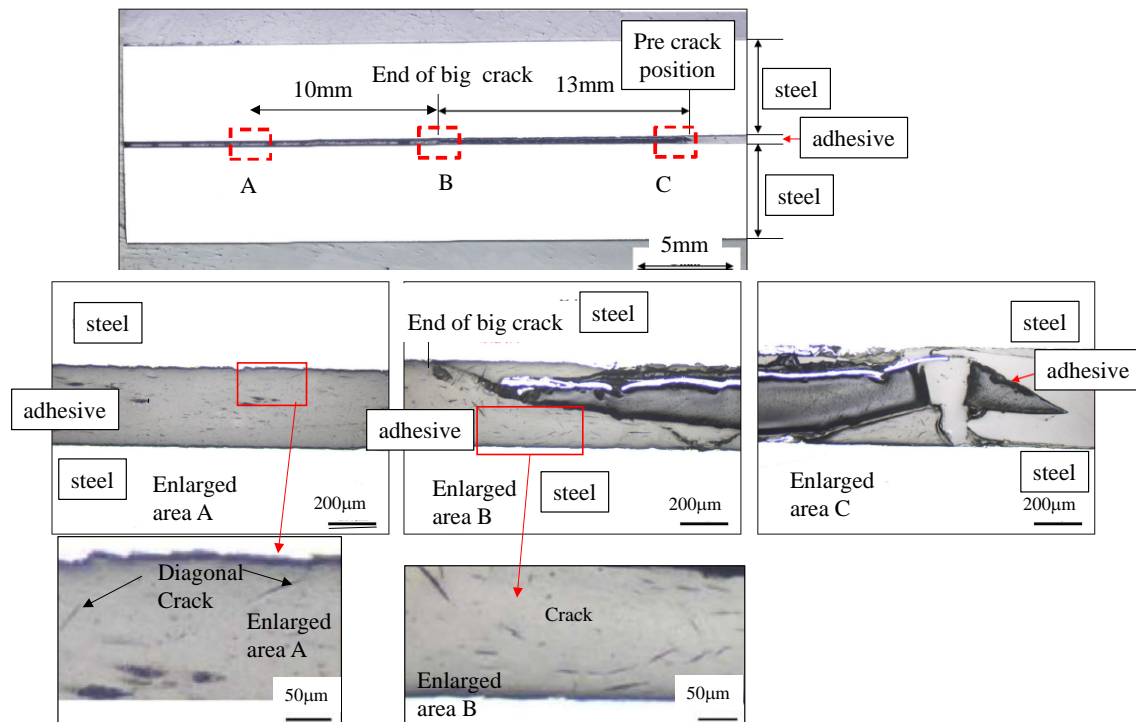


Fig. 6-26 Observation result of polished cross section at the position of 12.5 mm from the side of the ENF test specimen: Adhesive NS770, applied load 4040N

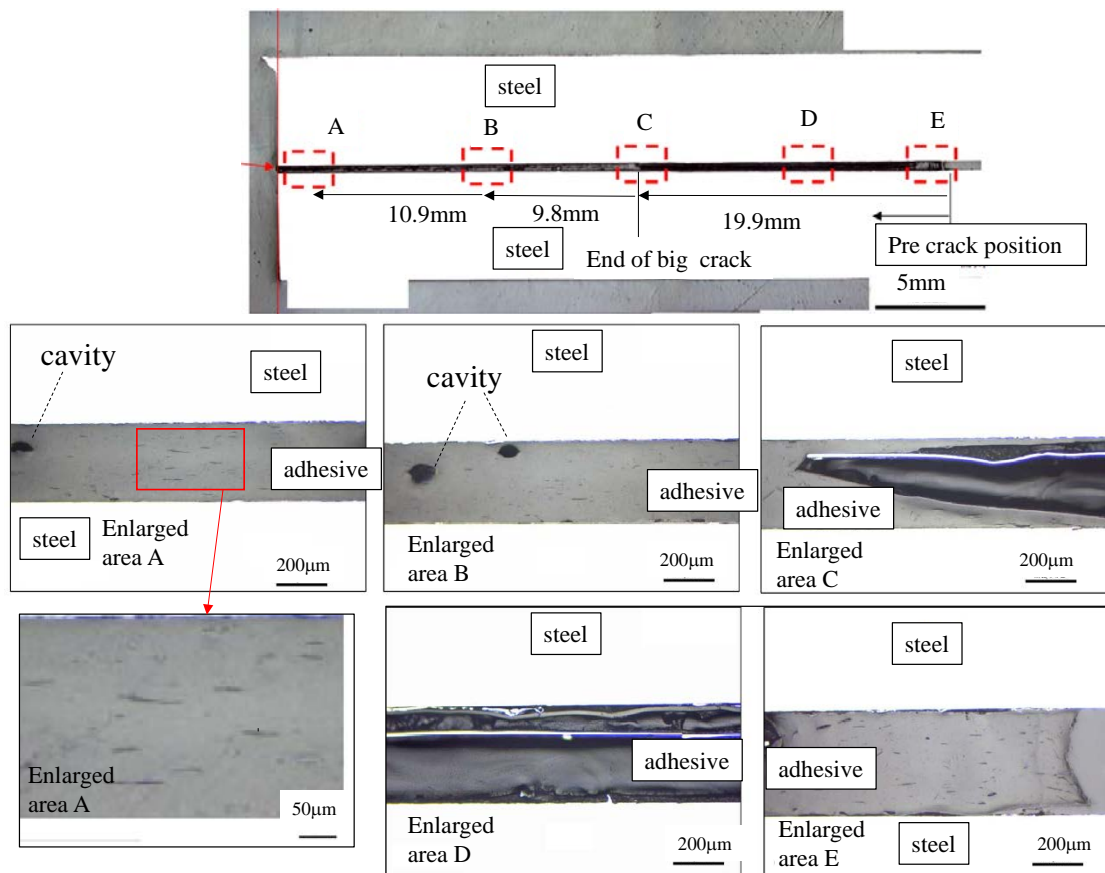


Fig.6-27 Observation result of polished cross section at the position of 6 mm from the side of the ENF test specimen: Adhesive NS770, applied load 4040N

3.6 ENF 試験での接着厚み変化の確認

ENF の断面観察では、共通して接着厚みが初期状態より $100\mu\text{m}$ 以上大きく広がっていることが認められた。DIC の垂直方向(クロスヘッド方向)のひずみを確認しても、接着の損傷域は垂直方向に 3%前後であるため接着厚み $250\mu\text{m}$ としても $10\mu\text{m}$ 以下程度が妥当な範囲であるため、 $100\mu\text{m}$ の接着層増加はそれを逸脱している。

接着層の広がり、ENF 試験中に本質的に広がったものなのか、除荷段階や、その後の試験片に残ったスプリングバックなどの影響で開いたものなのか、観察のために切断研磨した過程で生じたものなのかを判断する必要がある。そのために、ENF 試験を行いながらデジタルカメラで撮影して接着厚みの変化を調査した。ここでの接着厚みは上板と下板の距離のことである。これまでに DIC を測定してきたデジタルカメラの画像では白黒の斑点模様や解像度の問題

で接着厚み自体の変化を特定できなかったため、DIC を計測せずに ENF 試験を再度実施した。接着厚み変化を調査する実験では接着剤と鉄板も新しいもの新調し、測定を島津製作所製のオートグラフ AG-5000D で実施した。また、負荷を与えるロードピンが直径 9mm である。これらの点以外は、これまで実施してきた ENF の試験と同じ条件で実施した(試験速度 10mm/min 測定温度 $23\pm 2^{\circ}\text{C}$)。

厚みの変化は、予亀裂の位置を基準位置(0 mm)として中央部に向かって 10mm, 20 mm, 30 mm 離れた位置を調査対象とした。厚み変化調査のための接着剤 C355SL の ENF 試験の結果を Fig.6-28 に示す。この試験の時の試験前の接着厚みは約 $300\mu\text{m}$ であった。最大荷重(10532N)に到達するまでは、すべての地点で接着厚みは変わっていない。最大荷重を超えたあたりから接着厚みが大きくなっている。それぞれの観測地点で少し厚みが大きくなるのに時間差がある。また、除荷後にすべての地点で大きく接着厚みが増えている。

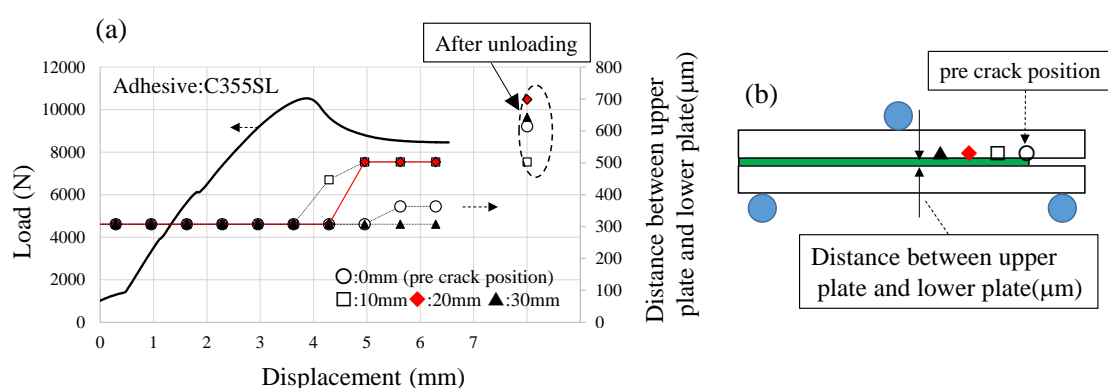


Fig.6-28 (a) Load- Displacement – adhesive thickness change diagram (adhesive C355SL)

(b) A picture showing definitions of marks and thicknesses

NS770 で接着した ENF 試験においても、その試験体の厚み変化調査を実施した。その結果を Fig. 6-29 に示す。NS770 の ENF 試験体では予亀裂部(0mm)の直下の部分は荷重が増すと接着厚み（上板と下板の距離）が小さくなる。これは、予亀裂より先には接着剤がないため、被着体が入り込むスペースが生じるためであると考えられる。予亀裂から 10mm 離れた位置では厚みの変化はほとんどない。一方、中央から 20mm の位置と 30mm の位置は接着厚みが薄くなると

いう傾向はほとんど認められないが、緩やかに厚みを増していく傾向にある。また、予亀裂からの距離が 20 mm と 30mm の位置では厚みが増減しながら変動する変化が認められた。20mm の位置の接着厚みが増すと、そのタイミングでは 30mm の位置の接着厚みが薄くなるような傾向がある。逆に 20mm 位置の接着厚みが薄くなると、30mm の位置の接着厚みが増すことになる。一つの連続体において、圧縮されたその周辺が浮き上がる現象に対応していると考えられる。NS770 についても試験後、荷重を除荷したのちに明らかに 250 μ m から 350 μ m 前後へ全体的に接着厚みが増している。これらの結果を踏まえると、断面観察において C355SL 接着の ENF 試験片が 6051N において 400 μ m 以上に接着厚みが開いていたこと、NS770 が 4040N の 350 μ m 以上に接着厚みが開いていた現象は試験後の除荷やスプリングバックの影響で接着厚みが開いた影響が大きいと考えられる。断面観察の持つ亀裂の発生の解釈は、この点を差し引いて行う必要がある。

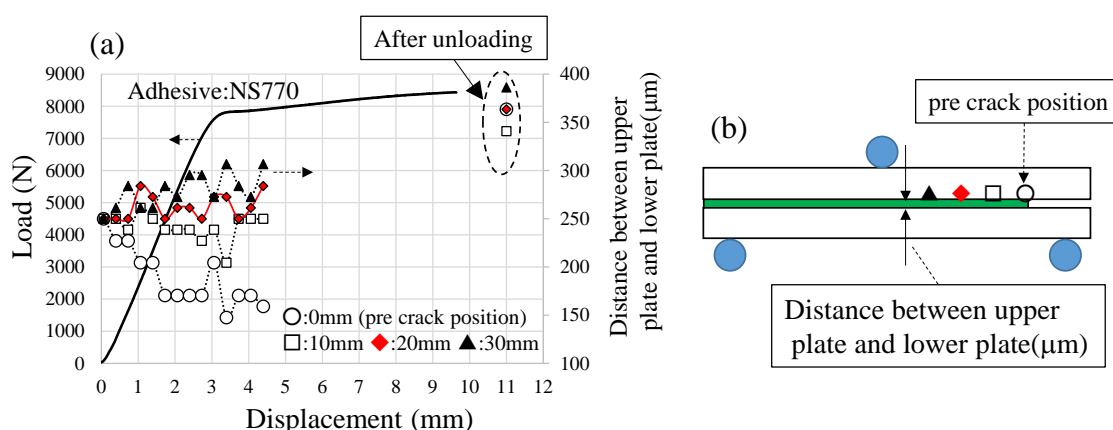


Fig.6-29 (a)Load- Displacement – adhesive thickness change diagram

(adhesive NS770)

(b) A picture showing definitions of marks and shift distance

3.7 破壊現象の総合的な考察 1 (ENF 試験の結果の整理)

ENF 試験、試験後のカラーチェック、断面観察、厚み変化、ダンベルの物性の調査結果も含めて ENF 試験の破壊状態を考察する。結果のまとめを Table 6-4 に示す。

Table 6-4 Summary of various evaluation results in ENF test and dumbbell test

Evaluation item	Adhesive material: C355SL	Adhesive material: NS770
Dumbbell	The elongation at break : about 12% The plateau region : about 6%	The elongation at break : about 28% The plateau region : about 16%
Load-displacement curb on ENF test	A load peak is obtained when the displacement is in the vicinity of 2.8 to 4 mm	No clear load peak appears
Color ink penetration check after ENF test	There is no penetration from the outside	There is no penetration from the outside
Observation of polished cross section after ENF test	<ul style="list-style-type: none"> •Microcracks were confirmed in the shear direction. •When giving a large displacement, a kink and a huge diagonal crack were confirmed 	<ul style="list-style-type: none"> •Microcracks were confirmed in the shear direction. •Most microcracks were in the shear direction. Slightly oblique cracks were also confirmed.
Changes in adhesion thickness during ENF test (distance between upper plate and lower plate)	<ul style="list-style-type: none"> •Adhesive thickness expanded after unloading •It did not spread until reaching the peak load, the adhesive thickness spread after the peak load. 	<ul style="list-style-type: none"> •Adhesive thickness expanded after unloading •The place near the load point at the center increases slightly, and the vicinity of the pre crack decreased.

ダンベル試験では C355SL は破断伸びが 12%程度であり，その中で荷重が平坦（プラトー）になる領域は 6%程度である。一方 NS770 のダンベル試験は伸びが 28%で，その中で平坦（プラトー）になる領域が 16%程度である。塑性変形する領域は NS770 の方が広い。

ENF 試験では C355SL は荷重－変位曲線でピーク荷重を示すが NS770 では明確なピークを示さない。ENF 試験の途中で荷重を止めて外部から赤いカラーチェックを浸透させた実験では，内部に色は浸透せず外部からの連続的な亀裂は存在していない。

ENF 試験の断面観察ではせん断方向にマイクロクラックが両方の接着剤で確認されている。NS770 では斜め方向のマイクロクラックも散見されている。C355SL で大きな変形をさせた時にはマイクロクラックが成長したキंकや斜めに巨大なクラックが発生している。

上鉄板と下鉄板の距離を接着厚みと見なしてその厚みを調べたところ，厚みは試験後の除荷した段階で大きな増加が認められる。荷重印加時では C355SL はピーク荷重までは上下板間の距離は増加していないが，ピーク荷重後に増加傾向をしめす。NS770 は荷重負荷部の近傍では上下板間の距離は試験開始直後から増加するが，予亀裂近傍は低下する傾向を示した。上下板間の距離の挙動がこのように接着剤で異なることも，材料の耐力の差や接着剤の塑性のしやすさ，許容伸びを反映していると考えられる。

3.8 AE シグナルのエネルギー解析

AE の位置評定を行った C355SL の ENF 試験における AE 計測結果について、破断面の調査結果とあわせて再度考察する。従来の評価では 3 点曲げの中心位置を AE 発生位置の 0 mm としていたため、予亀裂のない側の接着部分について内容を考慮してなかった。実際には、AE シグナルは予亀裂の存在する反対側でも生じている。AE シグナルは、AE 位置 35mm 近傍を起点としてクロスヘッドの移動量に従って中央部に向かって推移していくことがわかっている(Fig. 6-30)。

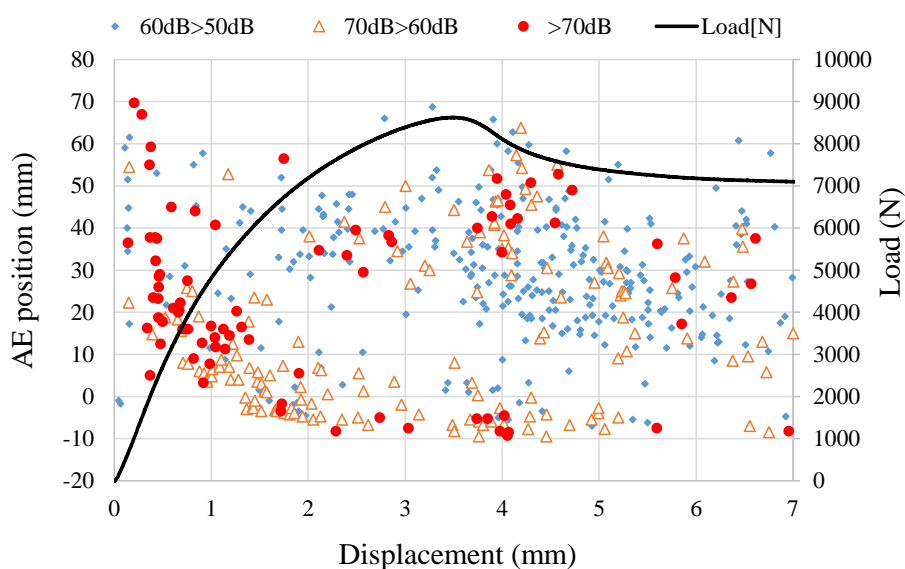


Fig.6-30 Position-Load-time-AE signal diagram on C355SL bonded ENF test

AE position: Including both non pre-crack side and non pre-crack side

AE のエネルギーを dB 単位から任意単位(e.u.)に対応するものに変換して、個別の AE エネルギーと累積 AE エネルギー、荷重、変位の関係をプロットしたものが Fig. 6-31(a)である。このグラフは接着と関係の薄い 35mm 以上の領域と 50dB 以下の AE シグナルを排除したエネルギーの結果である。

Fig. 6-31 (b)では、AE エネルギー、AE の累積エネルギーについて線形軸で表示した。この図において AE の累積の傾向を 3 つに分類した。先の断面観察で 6051N 荷重負荷と 5.59mm 変位

付与において観察を行っており、この2つの条件を分類の目安とする。試験初期(0N)から 6053 Nまでを領域 A、6053 Nからピーク荷重 (8612 N) までを領域 B、ピーク荷重から変位 5.6 mm (7231 N)までを領域 C とした。この領域 A,B,Cについて AE エネルギーの状態変化について比較する。領域 A は積算 AE エネルギーが 2.32×10^6 (e.u.) で領域 B は積算 AE エネルギーが 0.66×10^6 (e.u.) 領域 C は積算 AE エネルギーが 0.89×10^6 (e.u.) となる。

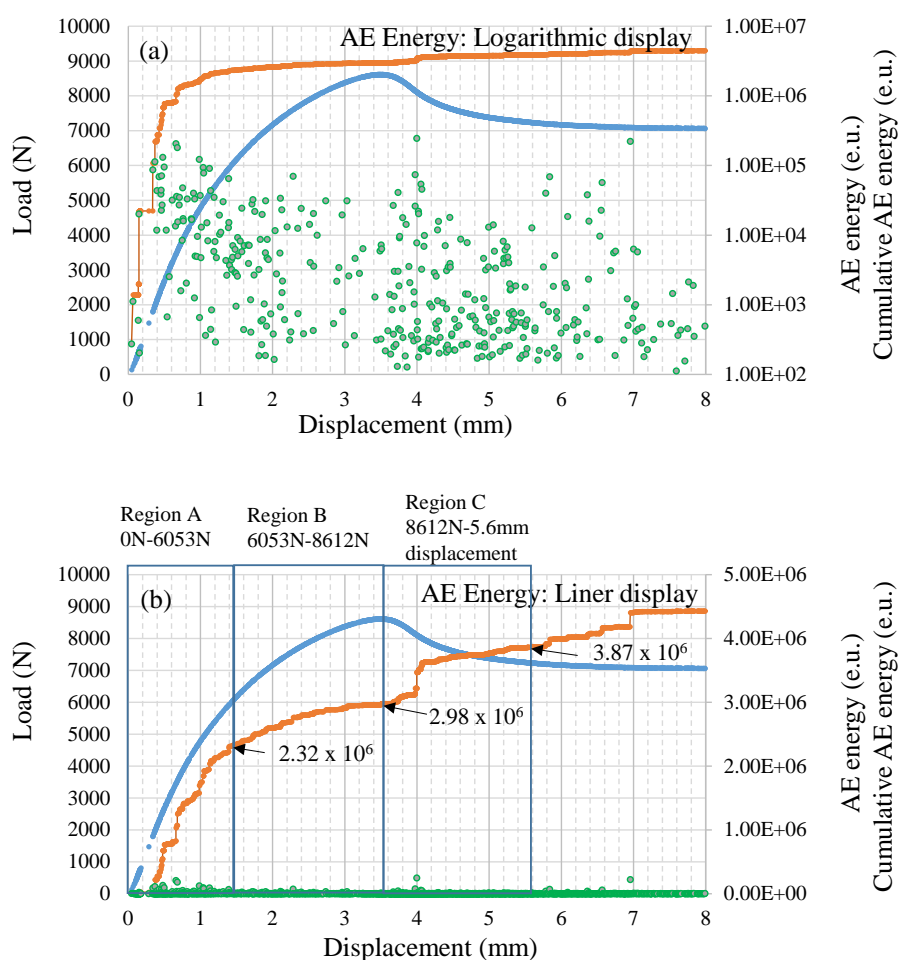


Fig. 6-31 Displacement-Load-AE energy diagram (measurement 1)

AE position was excluded a range larger than 35 mm unrelated adhesion part.

AE events less than 50 dB was eliminated.

(a) AE energy: logarithmic display

(b) AE energy: linear display

接着剤を使わない曲げ試験での AE 計測より、AE のエネルギーについては 5000(e.u.)を超え

るものは接着剤由来が大半で、5000(e.u.)以下では接着剤由来と鉄由来の AE シグナルが混在するものである(5 章, Fig.5-18)。ただし 6700N 以上の曲げ試験は鉄単独では実施できておらず、6700N 以上では鉄からも大きなエネルギーを生じる可能性はある。

3.9 破断面観察(せん断と TDCB 試験) 結果

せん断試験と TDCB 試験の後の破断面の観察を行う。観察に供した測定結果は、せん断試験は C355SL が 23.1MPa、NS770 は 14.1MPa である(Fig.6-32)。TECB 試験は C355SL はプラトー領域は約 1240N、NS770 は約 1000N である(Fig.6-33)。

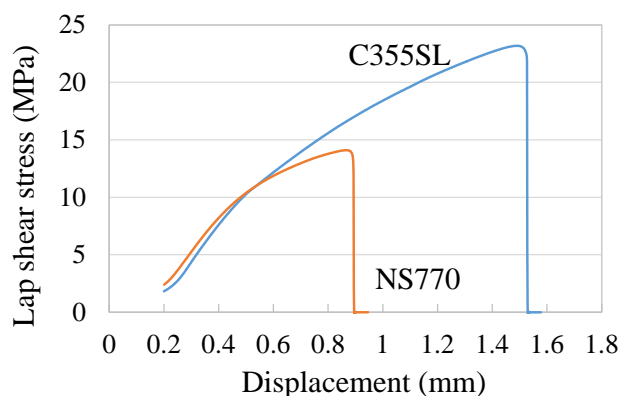


Fig.6-32 Measurement results of lap shear test corresponding to observation of fracture surface.

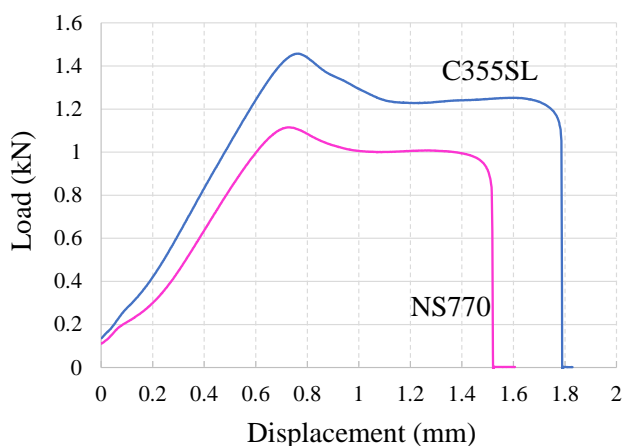


Fig.6-33 Measurement results of TDCB test corresponding to observation of fracture surface.

試験後の破断面をデジタルカメラで撮影したものを Fig.6-34 と Fig.6-35 に示す。せん断試験で

は両方の接着剤で全面にわたって凝集破壊を示している。C355SLは非常に毛羽だっている。NS770は若干の毛羽立ちが認められる。TDCB試験でも両方の接着剤において全面にわたって凝集破壊が認められる。TDCB試験ではC355SLは毛羽立ちがあり下地は見えないが、NS770はやや毛羽立ちはなくなり、薄く下地のフライス加工の痕が見える。

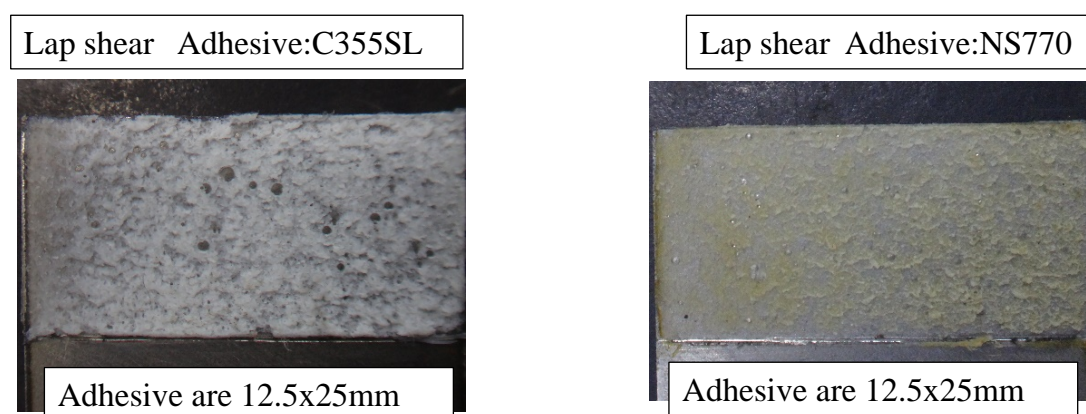


Fig.6-34 Observation result of fracture surface after lap shear test in digital camera photography

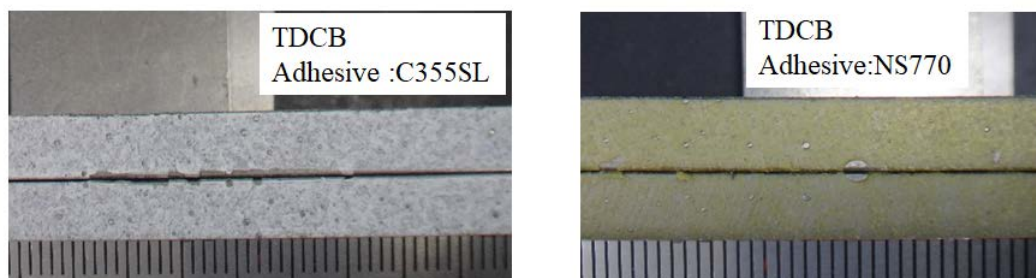


Fig.6-35 Observation result of fracture surface after TDCB test in digital camera photography

次に、走査電子顕微鏡（SEM）の観察結果を示す。SEMを観察するときは観察する前に金蒸着を施した。C355SLのせん断試験の破断面は曲面が多数確認された(Fig.6-36)。これは延性的な破壊面であると考えられる。一方、NS770のせん断試験の破断面はC355SLのせん断より曲面がやや少ないものの延性的な破断面が認められた(Fig. 6-37)。一方、TDCBのSEM観察では、C355SLではせん断試験同様、接着剤が曲面を有する状態で破壊されており延性的な破壊であるが、NS770では樹脂の曲面がほとんど見られない状態であることが確認された。この状態は

延性的というよりむしろ脆性的な破壊状態と考えられる。

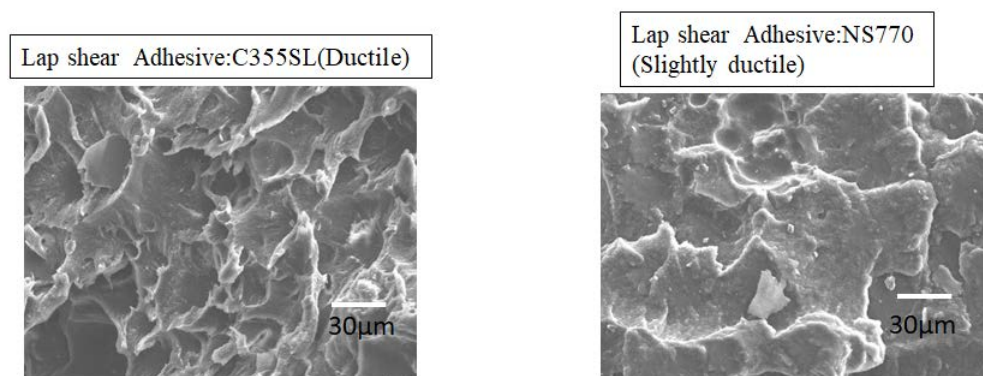


Fig.6-36 Observation result of fracture surface after lap shear test on SEM observation.

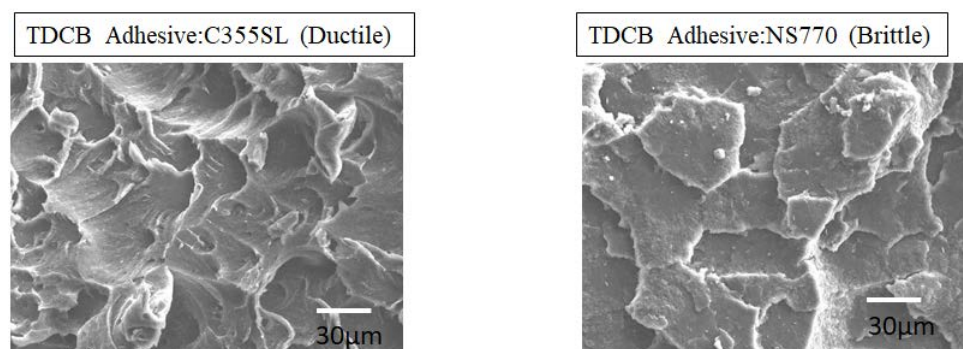


Fig.6-37 Observation result of fracture surface after TDCB test on SEM observation.

3.10 破壊現象の総合的な考察 2（せん断,TDCB の破壊過程）

前章で、TDCB 試験において、測定時のプラトー領域荷重やモード I のエネルギー解放率は接着剤 C355SL が大きいにも関わらず、AE のシグナル自体は NS770 の方が大きいという現象が認められた(Fig.6-38, Fig.6-39)。破断面のデジタルカメラ観察および SEM 観察の結果より、NS770 は TDCB 試験でのモード I の破壊の時は脆性的な要素が強い。そのため、AE が生じるときに急激な発生になり、大きな AE のエネルギー発生につながったものと考えられる。一方、延性を示す C355SL ではエネルギーの放出は脆性的な破壊現象ではないためそこまで大きくはならない。Fig.6-40 に TEM 画像における推定クラック発生箇所を示す。NS770 では白いアクリル相の中に粒状のエラストマーが散見される。一般的なエポキシ樹脂などは硬いマトリッ

クス相の中にエラストマーが添加されるが、この状況がこの箇所では同様な状態になっている。硬いアクリル相が割れて、粒状エラストマーを伝って割れるような現象(Fig.6-40 クラック①)が推定される。このクラック①はアクリル相が割れるのでエネルギー的に大きなものになる。他にも Fig.6-40 における②のようなエラストマー相がリッチなクラックの箇所も想定される。この②のクラック部分はエラストマーの破壊も多くあるため AE のエネルギーは大きなものにはならないと考えられる。5 章で示したように常温 (22~24°C) 領域での動的粘弾性測定 (DMA)測定における貯蔵弾性率と $\tan\delta$ は C355SL は測定周波数 1Hz の時 1.27GPa と 0.093 である。NS770 では測定周波数 1Hz のときは貯蔵弾性率は 0.78GPa で $\tan\delta$ は 0.181 である (Table 6-5)。基本的に C355SL の方が弾性率が高い材料である一方で、 $\tan\delta$ は NS770 が C355SL より 2 倍ほど大きい値である。これは波などの減衰も大きいことを示唆している。大きな AE 波は材料中で減衰しながらも伝達していくが、ある大きさ以下の AE は材料中で減衰してしまい、検出されにくいものと考えられる。NS770 ではせん断試験やモード II の ENF 試験では極端に AE の検出が乏しくなる。それは材料中への減衰によるものと推定される。一方、TDCB 試験でもせん断でもモード II の ENF 試験のすべての評価で適度な AE シグナルが観測された接着剤 C355SL は TEM 画像中でクラックの発生予想位置がエラストマーリッチの③の部分とアクリル相を跨いだ箇所④などが考えられる。例えばエラストマーリッチ部は Fig.6-38 の累積確率が 85%以下のクラック③で、累積確率が 85%以上の大きな AE エネルギーはクラック④のような推定がなされる。また、接着剤 C355SL は TEM 画像におけるアクリル相とエラストマー相は「共連続構造」であり、エラストマー相も硬いアクリル相も共に連続的な状態である。クラックなどの損傷が発生し付随して AE 波が生じる場合、波の伝達経路として連続的なアクリル相も伝っていくことが想定される。硬い部分を伝達していくため、発生源での AE のエネルギー自体が小さくても検出センサーに到達するまでの減衰が少なくなると推定される。

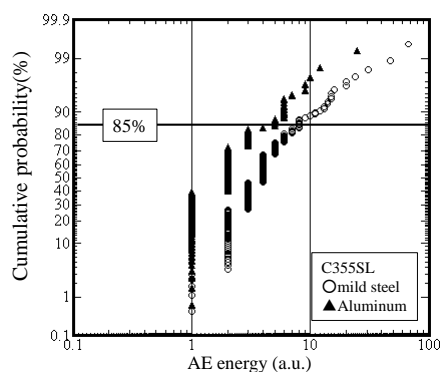


Fig. 6-38 Cumulative probability plot at a given AE energy level without the 0 value on a TDCB joint bonded with C355SL.(Same as Fig.5-14)

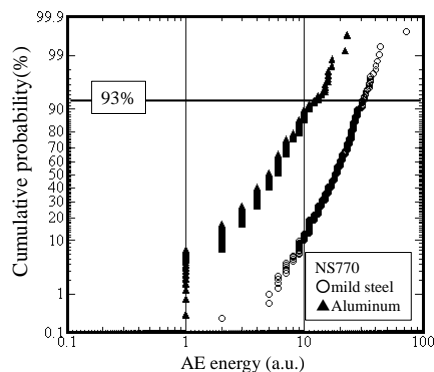
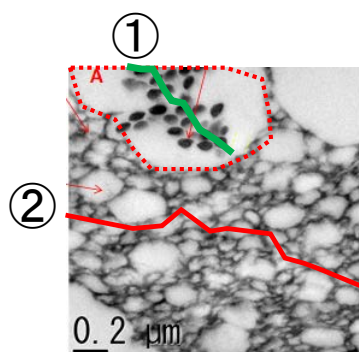
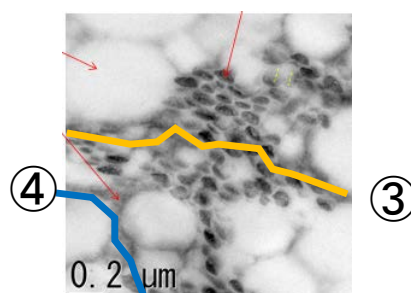


Fig. 6-39 Cumulative probability plot at a given AE energy level without the 0 value on a TDCB joint bonded with NS770. (Same as Fig.5-15)



TEM image NS770



TEM image C355SL

Fig.6-40 Crack occurrence supposition point in TEM image.

Table 6-5 Results of DMA measurement at 1 Hz in the room temperature region.

Adhesive	C355SL	NS770
Storage Modulus	1.27GPa	0.78GPa
Loss tangent	0.093	0.181

次に C355SL の TEM の画像を並べたものに対して、断面観察で実測されたもので最小に近いサイズ(Fig.6-26, 6-27)と同程度の大きさの亀裂に対応する印を疑似的に配置する。疑似クラックの大きさは $5\mu\text{m} \times 20\mu\text{m}$ の楕円とした(Fig. 6-41)。疑似微小クラックは、エラストマー相とアクリル相の両方を跨いで広がっている。同様に NS770 の TEM 像を並べたものに対して、断面観察で実測されたものの中で最小に近いサイズと同程度の大きさの亀裂に対応するするものを

疑似的に配置する。疑似クラックの大きさは $6\mu\text{m} \times 50\mu\text{m}$ の楕円とした(Fig. 6-42)。こちらに関しては、黒いエラストマー相だけで、亀裂が成立する可能性があるように見える。TEM 画像から C355SL はアクリル相とエラストマー相が共連続構造で NS770 は海島構造である。小さなクラックは C355SL の場合、白いアクリル相と黒いエラストマーリッチ相の両方に跨らざるを得ない大きさである。一方で、NS770 の場合、小さなクラックはそのほとんどが黒いエラストマーリッチ相上で描くことができる。微小クラックの発生も共連続構造がゆえにエラストマーリッチ相だけでなく隣接したアクリル相も損傷させざるを得ない。これも接着剤 C355SL がどの試験を行っても AE が検出しやすいという事象に対応していると考えられる。

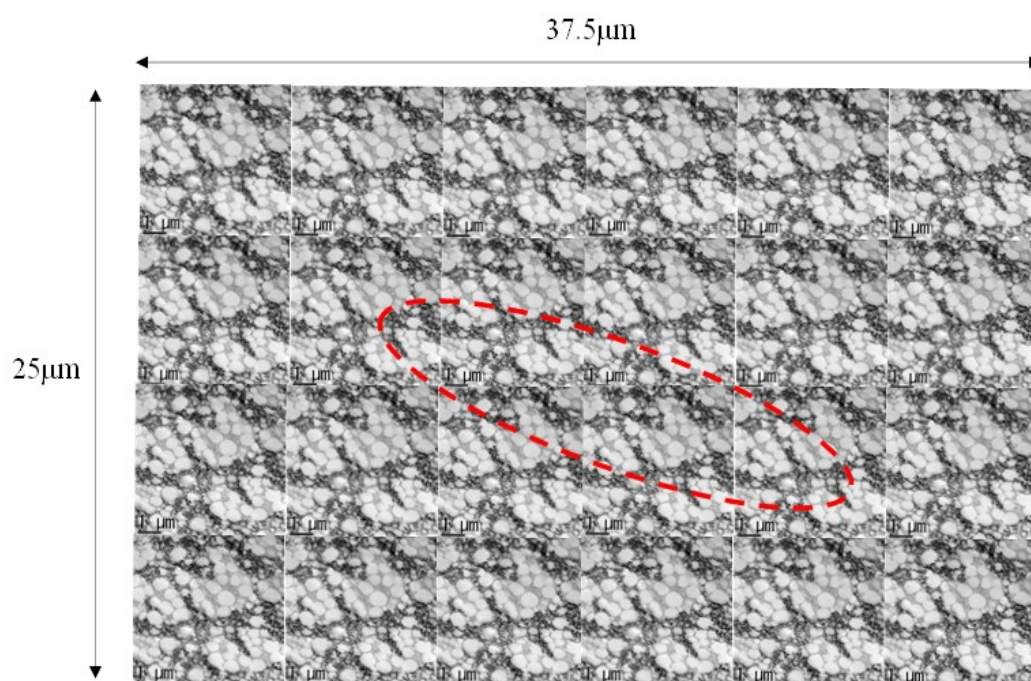


Fig.6-41 An image marked with a pseudo crack against the TEM image arranged side by side
(Adhesive C355SL, pseudo crack size: $5\mu\text{m} \times 20\mu\text{m}$ oval shape)

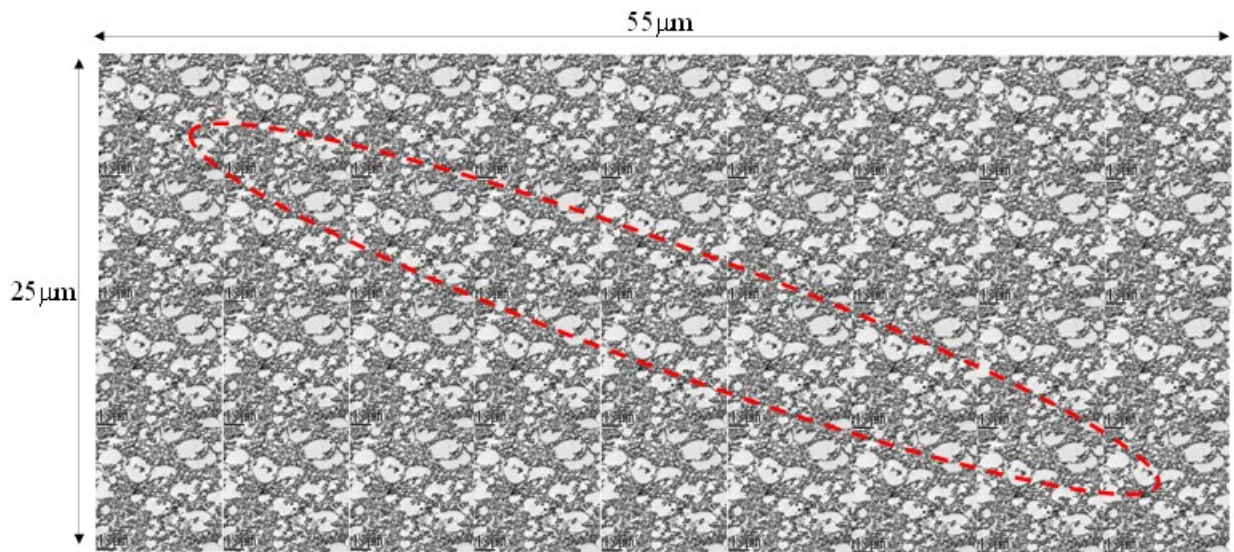


Fig.6-42 An image marked with a pseudo crack against the TEM image arranged side by side

(Adhesive C355SL, pseudo crack size: $6\mu\text{m} \times 50\mu\text{m}$ oval shape)

3.11 破壊現象の総合的な考察 3（クラック成長メカニズム）

次に断面観察結果からクラック進展を考察する。C355SLの5.59mm変位付与サンプルの断面観察の観察部位C(Fig.6-22)を対象にする。この部位は、荷重負荷点（Lord pin）より予亀裂とは反対側に位置する。そのため、ENF試験のクラック進展の主要評価部位から外れた位置になる。本来評価したい予亀裂側の領域のクラックの真の進展状況とは異なる可能性があるものの、材料の破壊の様式を明確に示しており接着破壊メカニズム考察の有用な情報とできる。この観察写真から考えられる亀裂の成長メカニズムをFig.6-43に示す。微細なクラックが生じ、キンクが生成、クラックが開き、開いたクラック同士の距離が接近して巨大な亀裂につながるという仮説が考えられる。また、モードIIの試験ではクラック先端（crack front）の近くではクラックの道筋の方向の45度方向に力が生じ、ハックルパターンが形成されることも報告されている⁽¹⁰⁾。また、本章でeffective crackの考え方を導入したきっかけは、デジタル画像相関のひずみ分布上で、小さいひずみの領域で大きなAEが示されることである。微小なクラックの生成やクラックのkinkingという領域では大きなAEエネルギーの発生が推定される。一方で、亀裂が開いたり、連続化していくところ

では AE のエネルギーは大きくないと考えられる。クラックの成長に関して時系列に並べたものが Fig.6-43(c)である。

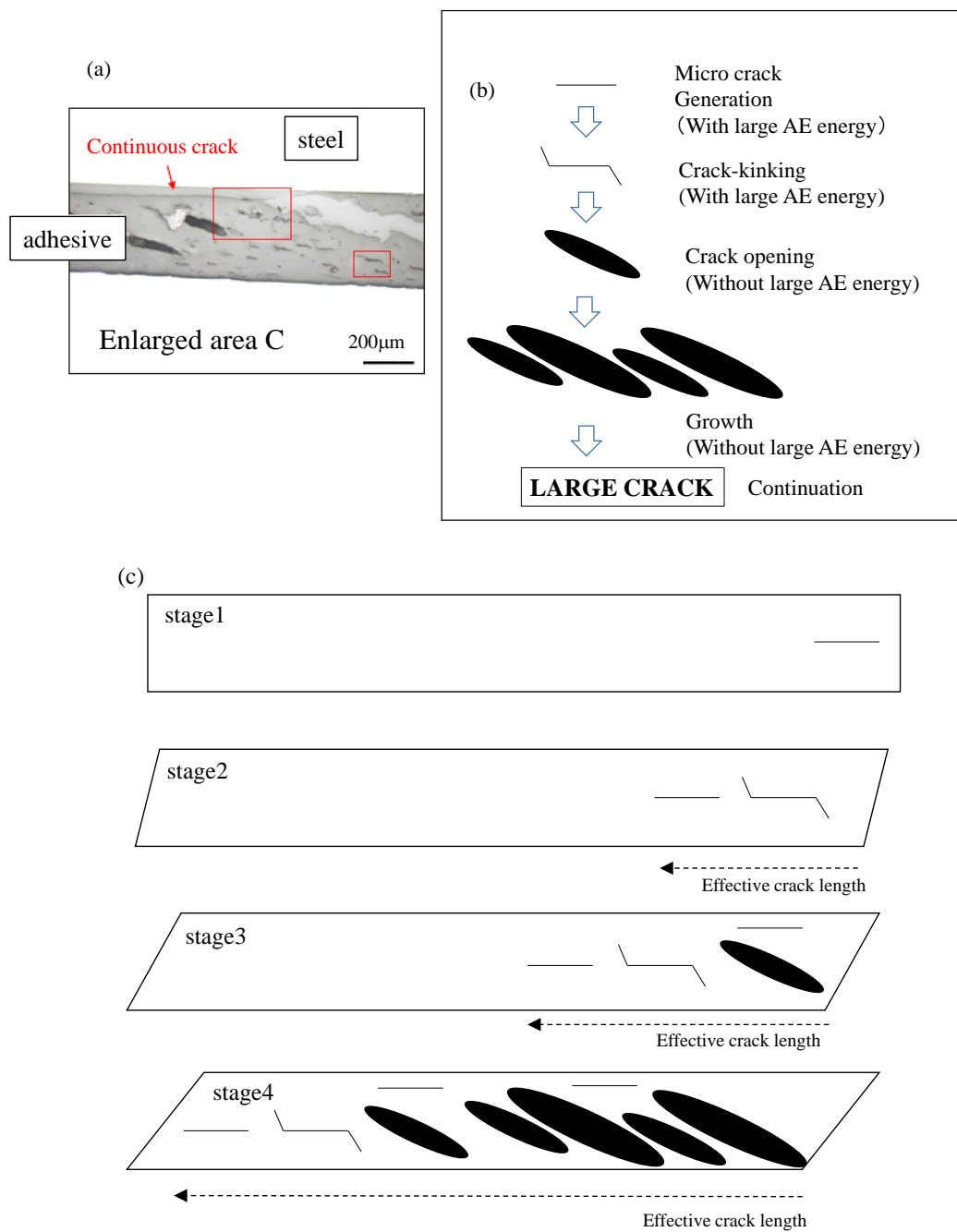


Fig.6-43 (a) Cross-section observation photograph referred to the representative drawing of crack propagation (Fig.6-28 Enlarged C)

(b) Schematic image of crack propagation

(c) Schematic image of crack propagation on adhesive layer

3.12. 実験結果から数理モデル展開への考察

本研究の目的は、材料の評価結果を正確に応力解析に適用していくことである。得られた結果から 2 項目について数理モデルへの適用方向性について以下に述べる。CZM (Cohesive zone model)モデルは Fig.6-44(a)に示されるように、変位と結合力(Traction)で囲まれる形状を決めることで応力解析に資する。ピーク結合力に到達するまでは損傷発生領域、ピーク到達後は損傷発展領域と定義されている。また、実用においては Mode I と Mode II のそれぞれに対して、分離 - 結合力(Traction-Separation)則を設定し、それらの混合したモードでの状態を予測しながら計算を行っていく (Fig.6-44(b))。本研究では接着剤 NS770 の場合、目視では凝集破壊が認められたが破断面の観察では Mode I では脆性的、シングラップのせん断では延性的な破断面が認められた。せん断は完全ではないものの Mode II の要素を強く反映した試験である。同じ材料であっても、モードのちがいによって脆性を示すという現象は考慮していく必要がある。これは損傷発展領域(Damage propagation)が短くなるなどのモデルに対応する (Fig. 6-45)。また、ENF 試験で亀裂相当のひずみ 8%と実効的なクラック長さのひずみ(2.4%)を示してきた。これらの事象をモデルに反映していくとすると、単純な Bi-linear のモデルではなく Tri-linear のモデルを設定していくことが挙げられる。Tri-linear のモデルにおいてははじめの変曲点は例えば、破断するときの 30%程度の位置に設定するなどのモデルが、具体的な案として提案することが可能である。

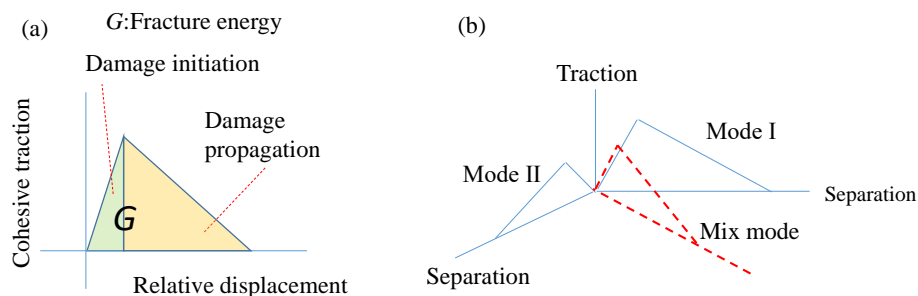


Fig.6-44 General description of CZM model

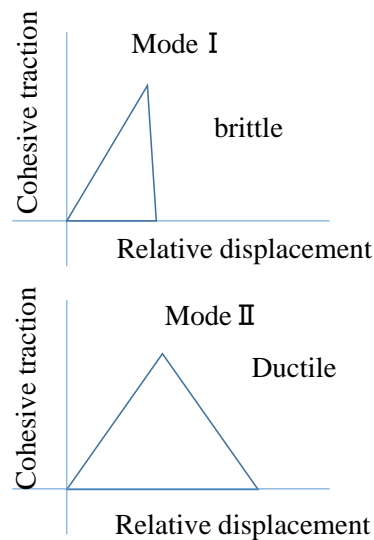


Fig.6-45 Reflection the brittleness and ductility in modeling CZM

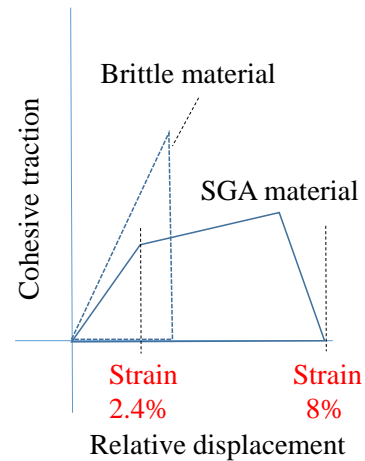


Fig.6-46 Extension from bi-linear model to tri-linear model

4.結言

本報告では，SGA 接着剤 2 種類について，ENF 試験においてモードⅡのエネルギー解放率の定量と，接着部の破壊過程の状態把握を高精度に行い，以下のことを明らかにした。

(1)実効的な亀裂長さを DIC から算出し，線形破壊力学の式から算出したモードⅡの破壊エネルギー G_{IIc} はモードⅠのエネルギー解放率 G_{Ic} に対して 2 倍程度の値であり，その数値として妥当性のある値となった。

(2)TDCB やせん断試験の破断面について詳細な観察を行い，材料の破壊モードにおける延性破壊，脆性破壊のちがいを確認した。TEM 画像におけるエラストマー分布や相構造，粘弾性の損失傾向とを併せて考察することで，AE のエネルギーの大きさとクラック発生箇所に関する推定できるに至った。

(3)ENF 試験の接着部の断面観察や AE エネルギーの積算傾向を確認することで，SGA 接着剤の亀裂発生と成長のメカニズムと AE 発生，有効クラック長さの関係に対する推定メカニズムを構築することができた。

(4)本章の最終部では，実験結果から抽出される重要な事象について CZM のような数理モデ

ルにどのように反映していくことが良いかの具体的な提案を行っている。SGA タイプのアク
リル接着剤をより正確に応力解析などの設計事項に転用していくための有用な知見となる。

文献

1. Budzik M.K., Jumel J., Ben Salem N. M.E.R., Shanahan, *International Journal of Solids and Structures* **50**, 310 (2013)
2. Blackman B.R.K., Kinloch A.J., Paraschi M., *Engineering Fracture Mechanics* **72**, 877 (2005)
3. Marzi S., Biel A., Stigh U., *International Journal of Adhesion & Adhesives* **31**, 840 (2011)
4. Nagai T., Iwamoto T., Sawa T., Kuramoto H., Uesugi N., *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series A* **75**, 1141 (2009)
5. Hase A., *Journal of the Japan Society for Precision Engineering* **78**, 859 (2012)
6. 大津政康 著 アコースティックエミッションの特性と理論第 2 版 P61 (2005)
7. O.T. Thomsen *et al.* (eds), *Sandwich Structures 7: Advancing with Sandwich Structures and Materials*, 915 (2005)
8. Tokuda T., Yoshida T., Uemori T., Takiguchi M., Yoshida F., *Journal of the adhesion society of Japan* **51**, 347 (2015)
9. Anderson T.L.著 栗飯原周二編 破壊力学 第 3 版 P81 (2011)
10. Bonhommea J., Argu A., Vin J., Vin I., *Polymer Testing* **28**, 612 (2009)

第 7 章 総括

本論文では第二世代変性アクリル系接着剤（SGA）接着剤に対して3つの観点から詳細な研究を実施した。第1の視点はハニカムサンドイッチパネルを対象とした研究である。ハニカムサンドイッチパネルにおける接着剤使用量削減に関する取り組みを通じて、SGA接着剤の役割や接着欠陥部の影響について検証した。第2の視点はアコースティックエミッション(AE)を活用したSGA接着剤での接着体の破壊過程の検証である。第3の視点は接着剤の持つ破壊エネルギーの同定および材料の観察による破壊メカニズムの現象の考察である。これらの研究を通じ、CZMモデルのような数理モデルへの展開を目的としている。

塗布量削減ではハニカムコアの接着ではストライプ状に接着剤を表面板に塗布し、部分的な接着欠陥を許容する方法を採用した。複数のSGA接着剤の中からハニカム接着に適した流動性の材料を選定した（材料名：NS770）。ストライプ状塗布と全面均一塗布の剥離トルクの比較から約40%の使用料の削減の見込みが得られた。接着剤の役割についてサンドイッチパネルの曲げ試験から検証し、ストライプ状塗布が曲げ試験で全面均一塗布に対して優位性を示す塗布量範囲（110～225g/m²）や、未塗布部のサンドイッチパネルの曲げ特性への影響を明確にした。接着剤フィレットの断面観察から、接着剤フィレットの大きさ(45度長さ)、フィレット体積を調査した。フィレットの長さはフラットワイズの試験と曲げ試験と相関があり、フィレットの体積はクライミングドラムの剥離トルクに相関があることを確認した。これらの知見を通じ、接着剤の使用量を削減していくと同時に求められるハニカムサンドイッチパネルの仕様に応じて、適した接着剤の塗布形態を選択することができるに至った。

AEの接着剤評価への活用は、ハニカムサンドイッチパネルと金属への面接着の両方で行った。ハニカムサンドイッチパネルでは試験速度依存性を検証し、ハニカムサンドイッチパネルにおけるAE発生位置は試験速度の上昇に伴い伴い広がることがわかった。また、接着サンプルとして、全面均一塗布したもの、ストライプ状塗布したもの、端部のみ接着剤を塗ったものについて比較し、AEのエネルギー変化に着目し、アルミハニカムコアの座屈現象の影響を明確にした。金属の面接着へのAEの評価は、せん断試験、破壊靱性試験（TDCB試験、ENF試験）

験) に対して, 2 種類の SGA 接着剤を比較する形式にて実施した。TDCB 試験では AE のエネルギーレベルとのエネルギーの積算傾向に 2 つの接着剤で差があることを確認し, 透過電子顕微鏡 (TEM) 観察結果と照合することで, エラストマー相とアクリル相の形成する構造とを関連付けた。これにより明らかになった SGA のモルフォロジーはエラストマー相とアクリル相の“海島構造”と“共連続構造”である。延性を示す SGA 接着では明確な亀裂の同定が困難であったため, せん断試験と ENF 試験では, AE の検出とデジタル画像相関(DIC)による接着層のひずみ可視化の併用した評価を実施した。せん断試験において破断直前の状態で多くの AE シグナルが確認され, DIC により破断直前のひずみの値を決定し, ENF 試験における臨界ひずみと見なすように扱った。ENF 試験において亀裂に相当するひずみは DIC 上で 8%であるが, 大きなエネルギーの AE 発生位置は実際には 2.4%のひずみ位置に集中していた。この結果から実効的なクラック長さとして注目すべきひずみの位置を特定した。AE を用いた材料評価は, TEM や DIC などの他の評価手法と併用して活用することで, より精度よく接着剤の内部の情報を引き出すことが可能であり, 一つの測定で材料の破壊メカニズム推定につながる水準に引き上げられることを示した。

エネルギー解放率の同定については, モード I の TDCB 試験では安定した亀裂成長が認められ精度の良い値がえられた。ENF 試験では, 線形破壊力学の式にてエネルギー解放率を算出したところ, モード I の半分程度の値しか得られず, エネルギー解放率の算出方法の改定を実施した。具体的には実効的なクラック長さとみなした値を用いた計算を実施し, モード II のエネルギー解放率としてモード I の数倍となる妥当性のある値を得るに至った。この手法はエネルギー解放率を算出するだけでなく, 実効的なクラック長さを破壊のプロセスゾーンとみなすという点で材料破壊分布の定量において優れた評価手法といえる。

各種評価の破断面や研磨した面について詳細な観察を行った。TDCB とせん断試験では破断面について詳細な観察を行い, 材料の破壊モードにおける延性破壊, 脆性破壊のちがいを確認した。TEM 画像におけるエラストマー分布や相構造, 粘弾性の損失傾向を併せて考察すること

で、AE のエネルギーの大きさとクラック発生箇所に関する推定ができるに至った。

ENF 試験の接着部の断面観察や AE エネルギーの積算傾向を確認することで、SGA 接着剤の亀裂発生と成長のメカニズムと AE 発生、有効クラック長さの関係に対する推定メカニズムを構築することができた。

本研究の最終部では、実験結果から抽出される重要な事象について CZM のような数理モデルにどのような形で反映していくことが良いかの具体的な提案を行っている。SGA タイプのアクリル接着剤をより正確に応力解析などの設計事項に転用していくための有用な知見であることを示している。

これらの研究結果は、従来から実績のある AE というセンシング手法を、DIC や TEM・SEM 観察などと併用評価することで SGA の接着部から更に多くの情報を引き出せることを実例をもって示したものであり、評価技術の高度化の点で優れた内容といえる。材料解析の面では、エネルギー解放率算出だけでなく SGA 内の高度に分散されたエラストマー相の存在形態と関連付けて AE の発生、伝達、減衰において深い考察がなされている。これは SGA のみならず他のエラストマーで変性された材料について AE 評価を行う際の非常に重要な視点を与えている。一連の検証結果と推定メカニズムは当初目的としていたモデルに展開していく場合、モデル設定における技術的な根拠を十分に補強できるものである。板金接着やハニカムパネルの設計時に応力解析において状態を予測していく精度向上が可能であり、工学的な価値向上につながるものである。

<学会発表>

- (1) 2010 年日本接着学会 第 48 回年次大会[日本接着学会主催]
軽量サンドイッチパネルにおける接着剤塗布に関する研究
- (2) 2012 年 第 8 回日本接着学会関西支部若手の会
ハニカムサンドイッチパネルにおける接着剤のストライプ状塗布による使用量削減効果 2
- (3) 2014 年 第 52 回日本接着学会年次大会 5th world congress on adhesion and related phenomena
The effect of weight reduction by dispensing striped adhesive to the honeycomb sandwich panel 3
- (4) 2015 年 38th annual meeting The Adhesion Society
The Effect of Weight Reduction by Dispensing Striped Adhesive to the Honeycomb Sandwich Panel 3
- (5) 2015 年 3rd International Conference on Structural Adhesive Bonding (AB2015)
Research for the strength of honeycomb sandwich panel and adhesive fracture
- (6) 2016 年 39th annual meeting The Adhesion Society
Research for the strength of honeycomb sandwich panel and adhesive fracture
- (7) 2016 年 日本接着学会第 54 回年次大会 (The 6th Asian Conference on Adhesion)
Study on the development of structural adhesive research for the strength of honeycomb sandwich panel and adhesive
- (8) 2016 年 Euradhe2016
Research for the Strength of Honeycomb Sandwich Panel and Adhesive Fracture with Acoustic Emission
- (9) 2017 年 4th International Conference on Structural Adhesive Bonding (AB2017)
Fracture propagation analysis on two parts acrylic adhesive joints
- (10) 2017 年 実験力学会年次講演会
延性接着剤を用いた接着構造体の破壊エネルギー測定に関する研究

- (11) 2017 年 8th International Conference on fracture of polymers, Composites and Adhesives
Investigation on fracture of Acrylic Adhesive Joints and Bulk Specimen
- (12) 2018 年 41th annual meeting The Adhesion Society (6th world congress on
adhesion and related phenomena)
Investigation of fracture energy and process zone on the adhesive joints using ductile
adhesive
- (13) 2018 年 第 56 回日本接着学会年次大会
延性接着剤を用いた接着体の破壊エネルギー計測に関する研究
- (14) 2018 年 Euradhe2018
Investigation of fracture energy and process zone on the adhesive joints using ductile
adhesive2

<査読論文>

- (1) ハニカムサンドイッチパネルにおける接着剤のストライプ状塗布による使用量削減効果
上山幸嗣, 原賀康介, 日本接着学会誌 **47**, 220 (2011)
- (2) ハニカムサンドイッチパネルにおける接着剤のストライプ状塗布による使用量削減効果 2
上山幸嗣, 日本接着学会誌 **50**, 88 (2014)
- (3) The effect of weight reduction by dispensing striped adhesive to the honeycomb sandwich panel 3
Koji Kamiyama, Shigeru Utsumi *Journal of the adhesion society of Japan* **51**, 315 (2015)
- (4) ハニカムサンドイッチパネルの破壊挙動に関する研究
上山幸嗣, 三國雅知, 松本壮史, 日本接着学会誌 **52**, 261 (2016)
- (5) Fracture propagation analysis on two component type acrylic adhesive joints
Koji Kamiyama, Masatomo Mikuni, Takeshi Matsumoto
International Journal of Adhesion and Adhesives **83**, 76 (2018)

謝辞

学位取得にあたり、ご対応いただいた兵庫県立大学の関係者に感謝いたします。特に本研究を進めるにあたり、有意義な議論を、貴重な意見を多数いただいた岸肇教授、松田聡准教授に厚くお礼申し上げます。

本論文にかかわる研究開発に従事させていただいた三菱電機株式会社の皆様、共同で研究していただいた方々にお礼申し上げます。また、測定・分析や各種評価において協力いただいた関係各位に感謝いたします。

最後に、私が研究、論文執筆に従事するための時間を捻出し、継続的な叱咤激励をしてくれた家族に感謝いたします。